

修士論文

積層配線TES型X線マイクロカロリメータの
評価環境とメンブレン加工プロセスの開発

首都大学東京大学院 理工学研究科 物理学専攻
博士前期課程 宇宙物理実験研究室

学修番号 16879310

北澤 誠一

指導教授 石崎 欣尚 准教授

2018年2月16日

概要

宇宙全体のエネルギー密度比率を考えた場合、その大部分はダークエネルギー (73 %) やダークマター (23 %) で構成されており、通常物質 (バリオン) は全体の 4 % 程度にすぎない。さらに、近傍宇宙ではバリオンの半分近くがダークバリオンと呼ばれる未観測の物質で、宇宙の熱的・化学的進化や大規模構造の形成に深く関わると考えられている。ダークバリオンは宇宙流体シミュレーションの結果から数百万度の中高温銀河間物質 (WHIM : Warm-Hot Intergalactic Medium) として分布していることが示唆され、OVII, OVIII の輝線を精密 X 線分光することで直接検出することができると考えられる。我々のグループでは、WHIM を含むダークバリオン探索を目的とする衛星 DIOS (Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor) を提案しており、そこへの搭載を目指して超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor) 型マイクロカロリメータの開発を進めている。TES 型マイクロカロリメータは超伝導金属の相転移時の急峻な電気抵抗の変化を利用することで、1 eV 台の優れたエネルギー分解能を実現できる検出器である。DIOS では TES の単素子について 5.9 keV の X 線に対して 5 eV (FWHM) 以下のエネルギー分解能が求められている。我々のグループの自作素子ではこれまで 5.9 keV の X 線に対し 2.8 eV (FWHM) を達成している。DIOS では、有効面積を大きくするために非常に大規模な検出器アレイが必要となるが、同時にアレイを大規模化すればするほど基板上の配線スペースが不足するという問題が生じる。また、周波数分割読み出しでは数百 kHz から MHz の高周波を信号に重畳するため、配線インダクタンスによるクロストークが問題となる。そこで、我々は SiO₂ 膜を挟んで検出器に続く超伝導配線を上下に重ねた積層構造を持った配線の開発を進めている。従来の構造に比べて配線スペースが削減されるため多素子化が可能になり、配線密度に余裕が生まれることでクロストークも抑えることが可能である。

これまでに我々は 20×20 ピクセルの積層配線 TES アレイの開発を行ってきたが、超伝導転移の確認ができなかった。しかし、化学機械研磨 (CMP) を用いたデザインへの変更と TES アレイ製膜時における逆スパッタ条件の見直しを行ったところ、360 mK 付近での超伝導転移を確認できた。

本研究では、TES 測定環境構築の一環として、外部磁場の遮断のために無冷媒希釈冷凍機で用いる磁気シールドの導入を行った。これまで用いられていたシールドは、主に無酸素銅で出来ており比透磁率が 1 程度であるため地磁気の遮蔽がほぼできていない。しかし、先行研究によって TES の超伝導転移特性や臨界電流に影響を及ぼすことが示唆されており、その存在を無視することはできない。そこで新たに二種類の磁気シールドを用い、冷凍機の最低到達温度と転移温度の変化を従来の環境と比較した。その結果、外部磁場を遮蔽すると最低到達温度は最大で 50 mK 上がり、転移温度は最大で 25 mK 下がった (図 1)。前者は予想道理の結果となったが、後者は磁場の影響を受けない分だけ転移温度が上がるという予想に反した。この原因としては、検出器ステージ内に磁場がトラップされ、磁気シールド導入前よりも高くなっている事が考えられるため、さらなる磁気遮蔽能力の向上目指し、上蓋も磁気シールドとして用いることも検討した。

その他に、超伝導に転移した基板の加工プロセスの構築を行った。まずパターニング後に行う吸収体製作について、厚みの設計をした。検出効率と DIOS 衛星のエネルギー分解能要求値の両方から検討した結果、2 μm 程度の厚さが適当であることが求まった。また、メンブレン加工プロセスの確立を目指した条件出し実験も行った (図 2)。結果、厚さ 380 μm の基板に対して、レジスト S1830G のフォトリソグラフィ条件がベーク 3 min、露光時間 3 s 以内となり、エッチング加工では、SiN_x が ICP-RIE 装置を用いた SF₆ によるドライエッチングを 60 min、SiO₂ がバッファードフッ酸 (BHF) によるウェットエッチングを 30 min、Si が ICP-RIE 装置によるボッシュプロセスを用いた加工を約 23 min 30 s 行

うことで、首尾よくメンブレン加工ができる事がわかった。これにより、メンブレン加工の条件出しが完了した。今後は、転移温度が 150 mK 付近の基板を用いて吸収体とメンブレンの加工及びその性能評価を行い、X 線照射試験に向けて準備を進める予定である。

目次

第 1 章 序論	1
1.1 X 線天文学	1
1.1.1 X 線天文学の展開	1
1.1.2 X 線観測の意義	2
1.2 X 線検出器	2
1.2.1 エネルギー分解能	3
1.2.2 ガス検出器	4
1.2.3 マイクロチャンネルプレート	5
1.2.4 半導体検出器	5
1.2.5 CCD カメラ	7
1.2.6 超伝導トンネル接合検出器	8
1.2.7 回折格子	8
1.2.8 X 線マイクロカロリメータ	8
1.3 次世代の X 線分光器に要求される性能	11
1.3.1 ASTRO-H(ひとみ)	11
1.3.2 Athena	11
1.3.3 ミッシングバリオン問題	12
1.3.4 DIOS ミッション	13
第 2 章 TES 型 X 線マイクロカロリメータ	17
2.1 X 線マイクロカロリメータの構造	17
2.1.1 吸収体	17
2.1.2 温度計	18
2.2 X 線マイクロカロリメータの原理	18
2.3 超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor)	20
2.4 ノイズとエネルギー分解能	21
2.5 電熱フィードバック (ETF: Electro-Thermal Feedback)	22
2.5.1 電熱フィードバック下の温度変化に対する応答	22
2.5.2 電熱フィードバックの一般論と電流応答性	24
2.6 SQUID を用いた読み出し系	26
2.6.1 dc-SQUID	26
2.7 ノイズとエネルギー分解能	27
2.7.1 固有ノイズ	28
2.7.2 最適化フィルタ	28
2.8 世界の開発状況	30
2.8.1 開発の歴史	30
2.8.2 世界の開発状況	30

第 3 章	これまでの開発状況	35
3.1	単素子の開発	35
3.1.1	TES に用いる金属の選定	35
3.1.2	製作素子の最高性能	35
3.2	多素子の開発	36
3.2.1	製作素子の最高性能	36
3.3	積層配線素子の開発	38
3.3.1	製作素子の性能	40
3.4	傾斜付き上部配線素子	41
3.4.1	製作素子の性能	43
3.5	傾斜つき積層配線素子	43
3.5.1	試作プロセス	44
3.5.2	製作素子の性能	44
3.5.3	原子間力顕微鏡 (AFM) 観察	45
3.5.4	表面荒さの改善	48
3.5.5	製作素子の性能	51
3.6	化学機械研磨 (CMP) を用いた積層配線素子	51
3.6.1	新デザイン	51
3.6.2	試作素子の超伝導転移	55
3.6.3	TES 成膜プロセス後の表面粗さ	57
3.6.4	CMP 積層配線基板の完成	57
3.7	これまでの積層配線素子開発のまとめ	59
3.8	本修論の目的	59
第 4 章	R-T 測定と性能評価の環境構築	61
4.1	無冷媒希釈冷凍機	61
4.2	マイクロプローバー測定とその解析	65
4.3	超伝導磁気シールドの性能評価とその効果	67
4.3.1	Al 超伝導磁気シールドの転移温度測定	67
4.3.2	合金の効果の考察	70
4.3.3	磁気シールドと冷凍機の最低到達温度及び TES の転移温度測定	73
第 5 章	吸収体の製作	75
5.1	本章の目的	75
5.2	吸収体の厚さ設計	75
5.3	EB 蒸着の原理	79
5.4	Au 吸収体の蒸着及びパターン形成	79
5.4.1	パターンフォトリソグラフィー	79
5.4.2	リフトオフによる金吸収体のパターンニング	80
5.4.3	TMU459 の吸収体製作	80
5.5	加工前後での性能評価	83
5.5.1	TMU459 の R-T 測定	83

第 6 章	メンブレン加工プロセスの構築	85
6.1	本章の目的	85
6.2	エッチング原理	85
6.2.1	DRIE によるドライエッチング	86
6.2.2	HF によるエッチング	86
6.3	メンブレン加工手順	87
6.3.1	両面アライナーによるフォトリソグラフィ	87
6.3.2	エッチングによるメンブレン化	88
6.4	TMU459 基板のメンブレン加工に向けた条件出し	90
6.4.1	TMU445 を用いたテスト加工	90
6.4.2	TMU444 を用いたテスト加工	91
6.4.3	基板厚みの相違	94
6.5	380 μ m 基板のメンブレン加工に向けた条件出し	97
6.5.1	プリベーク・露光条件出し	97
6.5.2	CMP20 を用いたテスト加工	99
6.5.3	CMP17 を用いたテスト加工	103
6.6	CMP18-tip3 を用いたテスト加工	107
6.7	まとめ	107
第 7 章	まとめと今後	109

目 次

1.1	宇宙空間からの電磁波が到達できる高度。	1
1.2	世界の X 線天文衛星の歴史。	2
1.3	おおぐま座の渦巻き型銀河の各波長でのイメージ (青: X 線 (<i>Chandra</i> 衛星)、黄: 可視光 (<i>Hubble</i> 宇宙望遠鏡)、赤: 赤外線 (<i>Spitzer</i> 宇宙望遠鏡)。	3
1.4	単色 X 線入射時の計測スペクトル。	3
1.5	Geiger-Muller 計数管。	5
1.6	マイクロチャンネルプレート。	6
1.7	半導体検出器の測定原理。	6
1.8	「ずさく」に搭載されている X 線 CCD カメラ。	7
1.9	超伝導薄膜の相転移端。	9
1.10	金属磁気マイクロカロリメータ (MMC) の概要図。	10
1.11	動インダクタンス検出器 (KID)。	10
1.12	X 線分光検出器のエネルギー分解能の変遷。	11
1.13	ひとみの SXS で観測したペルセウス銀河中心の全エネルギー帯域でのスペクトル。	12
1.14	Athena 衛星の X 線分光器 (X-ray Microcalorimeter Spectrometer)	12
1.15	流体シミュレーションによる銀河団周辺の物質分布。	13
1.16	<i>DIOS</i> 衛星。	14
1.17	<i>DIOS</i> の 10 万秒の観測で期待される WHIM からのエネルギースペクトル。	14
1.18	2 種類の酸素輝線を使って検出できる近傍宇宙のダークバリオンの割合 (横軸: 検出器の検出限界、緑の縦線: <i>DIOS</i> の典型的な検出限界)。	14
1.19	いろいろなミッションの広がった輝線放射に対する観測能力の比較 (縦軸: 視野 × 面積、横軸: エネルギー分解能)。	15
2.1	マイクロカロリメータの構造	17
2.2	X 線入射によるマイクロカロリメータの温度変化。	19
2.3	相転移点付近での温度に対する抵抗の変化。	20
2.4	理想的な TES 型 X 線マイクロカロリメータの X 線信号の電力スペクトルとノイズの電力スペクトル密度。	21
2.5	左図: 定電圧バイアス 右図: ショット抵抗を使って疑似的に作る定電圧バイアス	22
2.6	電熱フィードバックのダイアグラム	25
2.7	dc-SQUID の模式図	26
2.8	SQUID を用いたカロリメータの読み出し系	27
2.9	世界最高のエネルギー分解能を持つ GSFC/NASA の TES カロリメータ。(a) 32×32 ピクセルアレイの全体像。(b) TES カロリメータの SEM イメージ。(c) SEM 観察の拡大イメージ。	31
2.10	GSFC/NASA の TES カロリメータに X 線を照射した際に得られたエネルギースペクトル。	31
2.11	Athena に搭載予定の TES カロリメータアレイのデザイン [17]。	32

2.12 TES アレイの拡大図 [17]。	33
2.13 信号多重化の概要 (左: TDM、中央: CDM、右: FDM) [19]。	33
3.1 首都大製最高性能素子 (TMU146-4d)。 (a)16 ピクセル全体、 (b)1 ピクセルの拡大写真、 (c)Mn-K α を照射した際に得られたエネルギースペクトル。	36
3.2 MHI 素子。 (a) 基板全体図、 (b)1 ピクセルの拡大写真、 (c)Mn-K α を照射した際に得られ たエネルギースペクトル。	37
3.3 従来の 16 \times 16 アレイデザイン。	39
3.4 積層配線 20 \times 20 アレイデザイン。	39
3.5 TMU 284 の完成後の光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル部分。	40
3.6 TMU 284 pixel ID:0301 の R-T 測定の結果。左: 対数スケール、右: 線形スケール。	40
3.7 TMU 284 で得た 5.9 keV の鉄 55 線源に対する X 線信号。	41
3.8 TMU 293 の完成後光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル部分。	41
3.9 TMU 293 完成後の上部配線パッド - 下部配線 パッド間の室温抵抗の実測値マップ。白く 抜けているマスは導通していなかったピクセル。	42
3.10 傾斜付き上部配線概略図 (右) と FIB-SEM による断面観察結果 (左)。	43
3.11 TMU 349 pixel ID: 1120 の R-T 測定結果。左はリニア、右はログスケール。	44
3.12 TMU 394(wafer 07) 素子 (左) および配線 (右)。	45
3.13 TMU 394(wafer 07) 中央付近 の TES 上の AFM 結果。	46
3.14 Wafer 13 の中央付近 TES 下地の AFM。	46
3.15 イオンミリング前の酸化膜表面。	48
3.16 イオンミリング後の酸化膜表面。	48
3.17 イオンミリングと RIE を組み合わせた上部配線加工の概略図。	49
3.18 wafer20 の TES 下地酸化膜 AFM。	50
3.19 CMP 概略図	51
3.20 CMP 素子断面概略図。	52
3.21 CMP 素子上面図概略図。	52
3.22 上部配線と絶縁膜を成膜した積層配線基板。	53
3.23 CMP で研磨した積層配線基板。	54
3.24 CMP 前の表面粗さ (左) と CMP 後の表面粗さ (右)。	54
3.25 DEKTAK による高さプロファイル。	55
3.26 TUM445 の TES-上部配線コンタクト部分。	56
3.27 TMU477 中心ピクセル。	56
3.28 パターニング後の TMU477 表面酸化膜上 AFM 結果。	57
3.29 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 1110)。左:対数スケール、右:線形スケール。	58
3.30 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 0102)。左:対数スケール、右:線形スケール。	59
4.1 無冷媒希釈冷凍機。	62
4.2 冷凍機の各名称	62
4.3 冷凍機の操作スイッチ	63
4.4 冷凍機の液体窒素トラップ	63
4.5 測定に用いる機器。上から Lake Shore 370 (温度モニター、ヒーターの制御)、LTC-21 (素子の温度測定)、LR-700 (素子の抵抗測定)。	64
4.6 マイクロプローバー	65
4.7 得られた常温抵抗値のマッピング。	66
4.8 常温抵抗の理論値と実測値の比較。	66

4.9 Al 超電導磁気シールド (左) と CRYOPHY 高透磁率シールド (右)。	67
4.10 磁気シールドの導入箇所。	68
4.11 Al 合金の組み込み。	69
4.12 Al 合金の R-T 測定結果。	69
4.13 典型的なボンディングワイヤの RT 曲線。	70
4.14 臨界磁場と転移温度の関係 [18]。	71
4.15 Al の温度と熱伝導率の関係。	72
4.16 TMU441 の RT 測定結果。	73
5.1 吸収体の厚さと X 線透過率。	76
5.2 式 (5.9) のプロット。	77
5.3 EB 蒸着装置。	79
5.4 金のリフトオフ。	80
5.5 FIB による切削部分。	81
5.6 断面図 (上部配線-TES 接続部分)。	81
5.7 EDX による元素マッピング。	82
5.8 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 0318)。左:対数スケール、右:線形スケール。	83
5.9 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 0102)。左:対数スケール、右:線形スケール。	83
6.1 メンブレン加工前の基板断面図	85
6.2 ICP 装置内部の概略図。	86
6.3 ボッシュプロセスの概要。	86
6.4 メンブレン加工プロセスの概略。	88
6.5 両面アライナー。	89
6.6 アライメント合わせの様子。	90
6.7 基板の四辺をカプトンテープで二重に固定。	90
6.8 TMU445 のプロセス後の基板洗浄前後の様子。	91
6.9 エッチング後の TMU444。	92
6.10 ほぼ完全にエッチングできた TMU444 のメンブレン。	93
6.11 一部がエッチングしきれていない TMU444 のメンブレン。	93
6.12 下部配線が未露出な TMU444 のメンブレン。	94
6.13 TMU444 の Dektak 測定位置と結果。	95
6.14 3D レーザー顕微鏡 VK-9710。	95
6.15 TMU444 のレーザ顕微鏡観察結果。	96
6.16 実験結果から予想される TMU444、TMU445 及び TMU459 の基板断面図。	96
6.17 露光 12s、現像後の CMP17。パターンに丸い痕が残っている。	97
6.18 露光時間を変えた場合の基板の様子。	98
6.19 SiO ₂ エッチング後の CMP20。	99
6.20 CMP20 の全体像。	100
6.21 CMP20 のメンブレン状態分布。	100
6.22 下部配線が 8 割程度露出した CMP20 のメンブレン。	100
6.23 一部分のみ下部配線が露出したメンブレン。	101
6.24 100 μ m 程度しか掘れていないピクセル。	102
6.25 メンブレン加工後の CMP20 のピクセル。	102
6.26 CMP17 SiO ₂ エッチング 2 回目後の光学顕微鏡観察結果。	103
6.27 SiO ₂ エッチング二回目後の Dektak 測定結果。	104

6.28	膜とピクセルの向きの不一致。	104
6.29	CMP17 の膜。	105
6.30	CMP17 の全体像。	106
6.31	CMP17 の膜状態分布。	106
6.32	CMP18-tip3 の膜。	107

表 目 次

2.1	マイクロカロリメータを構成する要素の役割。	18
3.1	CMP 積層配線基板製作条件	55
3.2	TMU477 R-T 結果まとめ。	57
3.3	TMU459 製作条件	58
3.4	臨界電流測定結果。	59
4.1	無冷媒希釈冷凍機の機器仕様。	61
4.2	冷凍機ユニットの仕様。	61
4.3	磁気シールド情報まとめ。残留地磁気は地磁気を 0.462 G として計算。	67
4.4	ボンディングワイヤの長さで転移前後の抵抗値の差	68
4.5	磁気シールドの付け替え実験まとめ。	74
5.1	吸収体の厚さと 5.9keV と 1.5keV の X 線透過率の関係。	78
5.2	10 μ 定電圧バイアスから得られた R-T 測定結果。	83
5.3	臨界電流測定結果。	84
6.1	ISO.1min の 1 サイクル条件	89
6.2	TES_High.Speed の 1cycle 条件	89
6.3	TMU445 フォトリソ条件と加工条件。	91
6.4	フォトリソグラフィー条件出し結果まとめ。	98
6.5	CMP20 メンブレン状態分布まとめ。	99
6.6	CMP20 に行ったメンブレン加工	101
6.7	CMP20 との加工条件変更計画	103
6.8	CMP17 メンブレン状態分布まとめ。	106
6.9	CMP18-tip3 に行ったメンブレン加工	107
6.10	メンブレン加工に用いた基板情報まとめ	108
6.11	条件出し基板結果まとめ 1。	108
6.12	条件出し基板結果まとめ 2。	108
6.13	メンブレン加工プロセスまとめ。	108

第1章 序論

1.1 X線天文学

1.1.1 X線天文学の展開

太陽以外の天体からやってきたX線が初めて観測されたのは、1962年にアメリカのB. RossiやR. Giacconiらによる観測ロケットにより、全天で最も明るいX線源であるSco X-1が偶然発見された時である。この時代になるまで観測されなかった理由は、宇宙からのX線が地上まで届かないことにある。地上に100%近く到達する可視光に対し、宇宙から地球にやって来るX線は地球大気に吸収されてしまいほとんど地上に届くことはない。上空ないし大気圏外に出ることで観測でき、20世紀半ばからは気球やロケット、人工衛星などの技術の向上によりそれが可能になった(図1.14)。

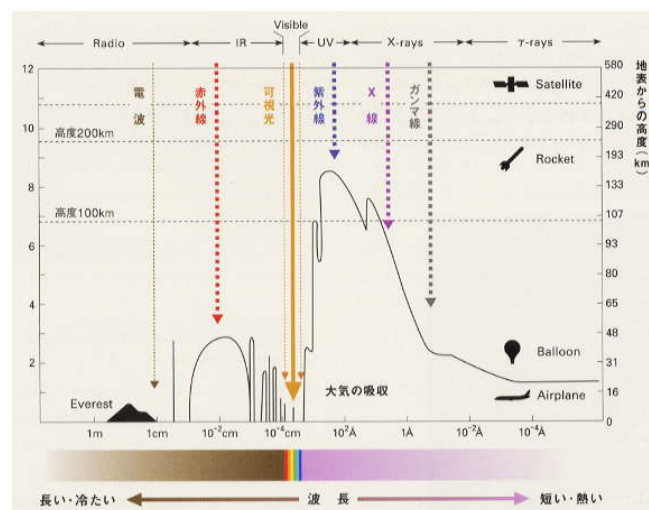


図 1.1: 宇宙空間からの電磁波が到達できる高度。

これを受けて、1960年代には小型の観測ロケットによりX線天体について断片的な知識が集められ始めたが、1970年に世界初のX線天文衛星 *Uhuru* (米) が登場し、全天走査の結果約400個のX線天体をリストアップすることで研究は大きく飛躍した。その後は各国のそれぞれ特徴を持った観測器を搭載した天文衛星が次々に打ち上げられ、それらの幅広い活躍によりX線という波長は宇宙物理学にとって不可欠な窓として確立されてきた。

日本のX線観測の歴史は小田稔が考案した「すだれコリメータ」によって、さそり座X1の位置を同定することに成功したことから始まった。このコリメータは、2層のすだれ状のコリメータを検出器の上に置くことで、入射X線の角度による強度変化を感知し、方向を知るという仕組みであり、X線撮像の難しい > 10 keV以上の太陽X線観測でもこの原理に基づく装置が今も使われている。すだれコリメータは1979年に打ち上げられた日本の第1機目のX線天文衛星「はくちょう」に世界で初めて搭載され、次々と新しいX線源の位置を決定することに貢献した。「はくちょう」を皮切りに、1983年に「てんま」、1987年に「ぎんが」、1993年に「あすか」、2005年に「すざく」と続き、2016年2月12日に5番目のX線天文衛星である「ひとみ (ASTRO-H)」の打ち上げに成功した。(図1.2)。

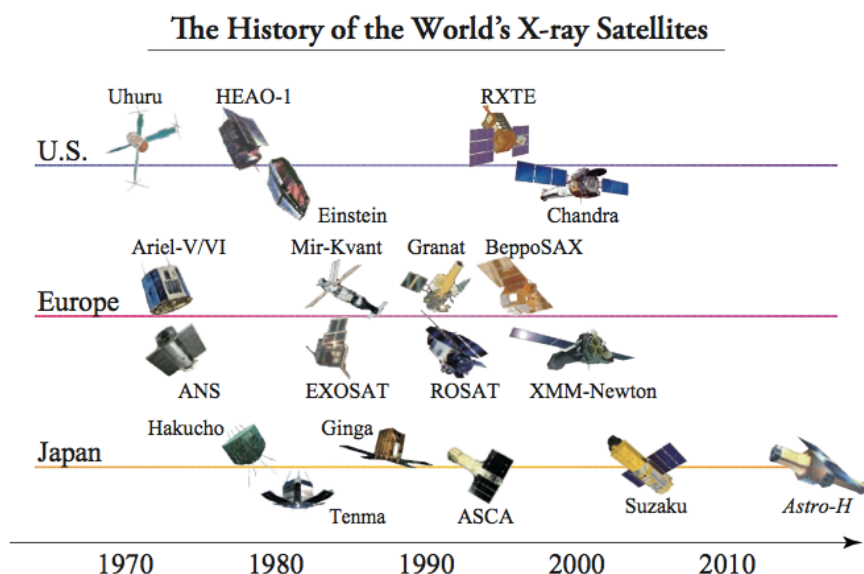


図 1.2: 世界の X 線天文衛星の歴史。

1.1.2 X 線観測の意義

今日の宇宙観測は主に電磁波を用いて行われている。宇宙に存在する物質や現象は、ミクロからマクロまで、低温から高温までと実に幅広い。そのため、電波・赤外線・可視光・X 線・ γ 線を用いた多波長による複合的な観測により宇宙の本質を探る研究がなされている。その中で宇宙における X 線や γ 線領域の放射は非常に多く、銀河間に存在する超高温ガスからの熱放射、超相対論的電子による逆コンプトン散乱、超新星残骸や γ 線バーストからのシンクロトロン放射、X 線パルサーからのサイクロトロン共鳴などが挙げられる。また 10 keV 以上のエネルギーをもつ硬 X 線・ γ 線領域では、高エネルギー天体から放出される非熱的な放射や高温の熱放射を観測することが可能である。従って、宇宙における高温、高エネルギー現象を捉えるのに適した電磁波である。また、0.1~10 keV の X 線エネルギー帯 (軟 X 線帯) には、炭素、窒素、酸素、ネオン、マグネシウム、シリコン、硫黄、アルゴン、カルシウム、鉄、ニッケルなどの宇宙に存在する主要な重元素の K、L 輝線が存在する。X 線・ γ 線による天体観測は、宇宙におけるこれらの重元素の量や物理状態を知る上でも重要な手段のひとつである。

X 線を放射する天体は多岐に渡り、それぞれ異なった特徴の X 線を放射している。例えば、白色矮星、中性子星、活動銀河核のブラックホールなどの高密度天体と恒星 (伴星) との連星系では、伴星からの質量降着によって高温の降着円盤が形成され、そこからの黒体放射や熱制動放射による X 線が観測される。中心星の自転や伴星の公転によって X 線強度が周期的に変化する X 線パルスが観測されることもある。また、銀河や銀河団からはそれらに付随する高温プラズマによる熱制動放射の X 線が見られる。最近では、太陽系惑星周辺の中性原子と太陽風の電離プラズマによる電荷交換反応によって X 線輝線が放射されることも分かってきた。X 線を通して見ると宇宙は高温、高エネルギー現象で満ちあふれていることが分かる。こういった情報をより正確に捉えるために、X 線検出器の撮像能力やエネルギー分解能、時間分解能などを向上させることは重要であると言える。

1.2 X 線検出器

X 線は物質との相互作用などを利用して検出することができる。これまで様々な種類の X 線検出器が開発され、X 線天文学の発展に貢献してきた。その多くが X 線により物質中に与えられたエネルギーが

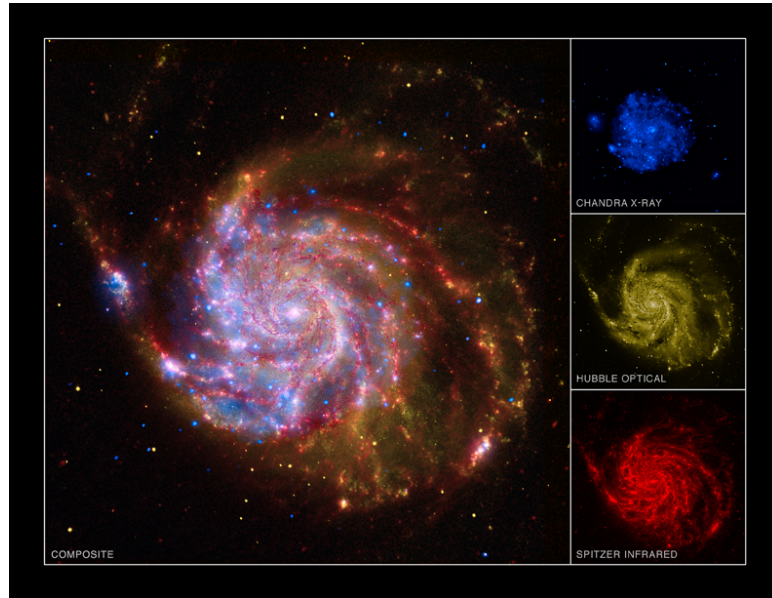


図 1.3: おおぐま座の渦巻き型銀河の各波長でのイメージ (青: X線 (*Chandra* 衛星)、黄: 可視光 (*Hubble* 宇宙望遠鏡)、赤: 赤外線 (*Spitzer* 宇宙望遠鏡)。

電子・原子・分子の相互作用の多数回の繰り返しの通じて、多くの原子・分子に分配されていく物理過程、または結果を利用して放射線を検出するものである。ここでは、代表的な X 線検出器を紹介し、その原理や特徴などについて簡単に述べる。

1.2.1 エネルギー分解能

X 線検出器に関して記述するにあたって、ここでエネルギー分解能についての一般論を述べる。エネルギー分解能とは X 線光子のエネルギーの決定精度のことで、決定した X 線光子のエネルギーの頻度分布を X 線エネルギースペクトルと呼ぶ。エネルギー E_0 の単色の X 線が入射した際に得られるエネルギースペクトルを図 1.4 に示す。

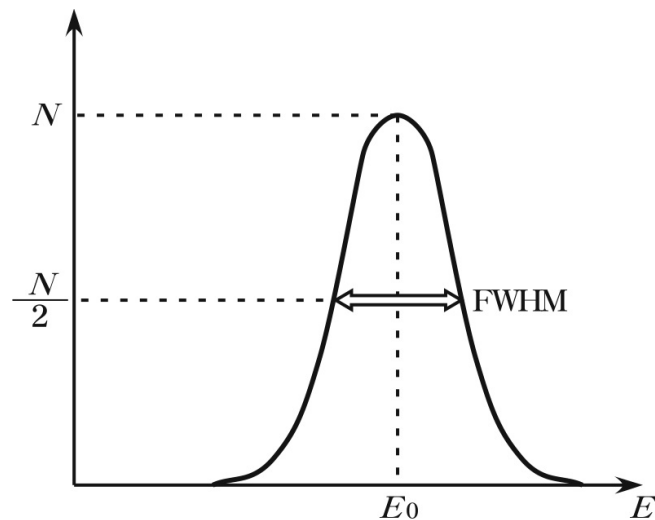


図 1.4: 単色 X 線入射時の計測スペクトル。

キャリアの揺らぎや読み出しシステムによるノイズなどの影響により、単色 X 線を入射した場合で

あっても得られるエネルギースペクトルは必ず有限の幅を有する。この分布の高さが半分になるところの幅を半値幅 (FWHM: Full Width Half Maximum) とよび、検出器のエネルギー分解能の指標として用いられる。半値幅が小さいほど分解能は高い。一般に X 線検出器では、X 線入射時の検出器との相互作用によって生じる電子、イオン、正孔、フォノンなどのキャリアを収集して入射エネルギーを測定する。検出器に 1 つの光子が入射し、生成した情報キャリアが N 個であったとする。ここで、キャリアの生成はポアソン (Poisson) 統計に従うとし、情報キャリア生成に必要なエネルギーは入射 X 線光子のエネルギー E_0 に比べて十分に小さく、情報キャリア数 N が十分に大きい場合には、図 1.4 に示す応答関数はガウス (Gauss) 分布となる。その標準偏差は $\sigma = \sqrt{N}$ であり、半値幅は $\text{FWHM} = 2.35\sqrt{N}$ で表されることとなる。これより、情報キャリア数の統計揺らぎによって決まるエネルギー分解能 ΔE は、

$$\Delta E_{\text{FWHM}} = \frac{2.35E_0}{\sqrt{N}} \quad (1.1)$$

と表される。しかし、実際には情報キャリアの生成はポアソン分布に完全には従わないので、実際のエネルギー分解能の限界は、

$$\Delta E_{\text{real}} = 2.35E_0\sqrt{\frac{F}{N}} \quad (1.2)$$

と表される。ここで F は Fano 因子と呼ばれるポアソン統計からのずれを定量化するために導入された係数であり一般に $F \leq 1$ である。

1.2.2 ガス検出器

比例係数管 (PC: Propotional Counter) は円筒または角筒を陰極とし、細い芯線を陽極として高電圧を印加し前置増幅器を通してパルス信号を取り出す検出器である。放射線がガス中を通過する際に、ガスを電離して一次電子とイオンを生成する。それぞれ電場により加速されるが、質量の違いから電子の方がより速く移動する。加速を受けた一次電子がガスのイオン化ポテンシャルを超えるエネルギーを得ると、一次電子によるガスのイオン化が生じ二次電子をイオンの対ができる。これを繰り返すことで入射エネルギーに比例した個数の電子が生成され、電極へ達することとなる。この電子増幅過程を電子なだれと呼ぶ。筒の中には希ガスと有機ガスの混合ガスを流すか密封する。筒の一部を切り取り X 線透過率の高い薄膜を取り付けて X 線の入射窓にする。芯線には直径 20~100 μm のタングステン線が主に用いられ、混合ガスとしては Ar 90% + CH₄ 10% の PR(P-10) ガスがよく使用される。X 線入射窓の膜には Be、Al、Ti の金属薄膜やポリプロピレン、マイラー、カプトンなどのプラスチック薄膜が用いられる。検出効率は窓膜の透過率とガスの吸収率によって決まる。

エネルギー分解能は一次電子と二次電子の数の揺らぎで決まる。比例係数管では特に二次電子の数の揺らぎが大きく、入射 X 線エネルギーを E_0 、一つの中性ガスを電離しイオン対を生成するのに必要なエネルギーを W とし、二次電子の数の揺らぎの影響を加味し、式 1.2 を書き換えると、エネルギー分解能 ΔE は、

$$\Delta E = 2.35\sqrt{E_0W(F+b)} \quad (1.3)$$

と表される。ここで b は電子なだれの理論的予想から導かれる定数であり、 $0.4 < b < 0.7$ 程度の値を持つ。比例係数管での典型的な値としては、 $W = 35 \text{ eV}$ 、 $F = 0.20$ 、 $b = 0.6$ である。これを上の式に代入すると、6 keV に対するエネルギー分解能は 960 eV となる。

比例計数管に似た X 線検出器で X 線天文学の初期に使用された Geiger-Muller 計数管は、電子増幅が飽和するほど高い電圧を印可するものであり、エネルギー測定よりも X 線の計数に特化した検出器である (図 1.5)。世界初の X 線天文衛星 *Uhuru* 衛星 (米) に搭載されて以来、これまで多くの衛星に搭載さ

れてきた。中でも *Einstein* 衛星 (米) や *ROSAT* 衛星 (独) には、位置検出機能を備えた比例計数管が搭載され、X線撮像分光検出器としてX線望遠鏡の焦点面に配置された。日本の衛星「ぎんが」にも非X線バックグラウンドを低減する反同時計数機能を持った比例計数管が搭載された。

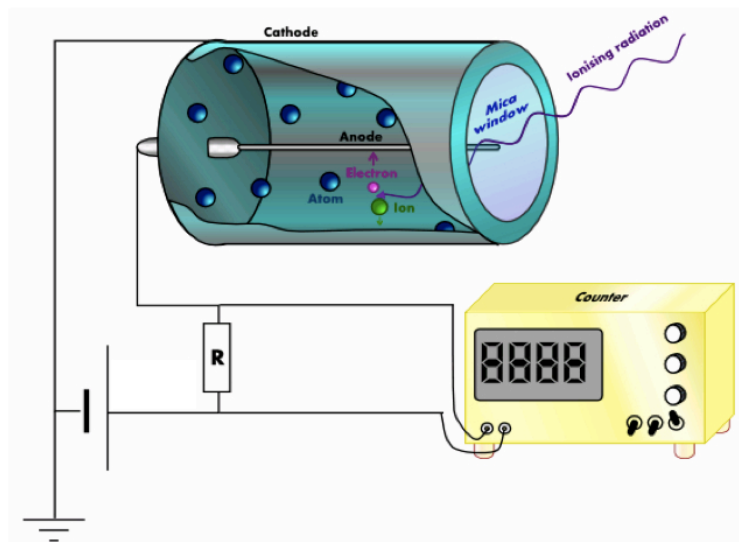


図 1.5: Geiger-Muller 計数管。

一方、ガス蛍光比例係数管 (GSPC: Gas Scintillation Proportioanl Counter) では一次電子で中性ガスを励気させ、これが基底状態に戻る際に放出する光子を利用したもので、電子なだれを生じることがないため比例係数管よりも高いエネルギー分解能を達成することが可能である。代表的なガス蛍光比例係数管での値 $W = 35$ eV、 $F = 0.20$ を用いると、6 keV に対するエネルギー分解能は 480 eV となる。この値はX線天文衛星「あすか」に搭載されていた GIS (Gas Imaging Spectrometer) のエネルギー分解能にほぼ一致する。

1.2.3 マイクロチャンネルプレート

マイクロチャンネルプレートはX線検出器の中では最も高い位置分解能を得ることができる検出器の一つである。図 1.6 に示すように、細管を多数束ねて平板状にした検出器である。細管の両端には電圧が印可されている。細管はそれぞれ光電子増倍管の役割を果たし、X線が細管の内壁に入射した際に発生する光電子を増倍する。この過程で増倍された電子を信号として取り出すとX線エネルギーの情報は得ることができないが、入射X線の位置の情報を得ることができる。そのため、X線望遠鏡の焦点面に配置することでX線画像を得ることができ、X線撮像検出器として用いることができる。これまで *Einstein* 衛星 (米) や *EXOSAT* 衛星 (欧州)、*ROSAT* 衛星 (独)、*Chandra* 衛星 (米) などに搭載され、銀河や銀河団の高温プラズマの空間分布の研究などに大きな貢献をした。

1.2.4 半導体検出器

半導体検出器は比例計数管とは異なり、アルゴンガスではなくシリコンやゲルマニウムなどの半導体と使用するものである。この検出器の基本的情報キャリアはX線から変換された一次電子であり、入射X線にそって電子・正孔対が生じる。これを検出器内部に印加した電圧によって収集して電気信号として読み出すのが基本的な検出原理である。次に述べるX線CCDも広義では半導体検出器であるが、こ

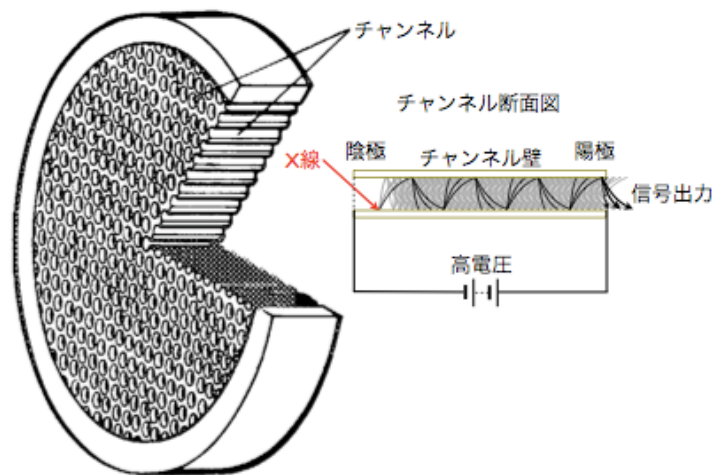


図 1.6: マイクロチャンネルプレート。

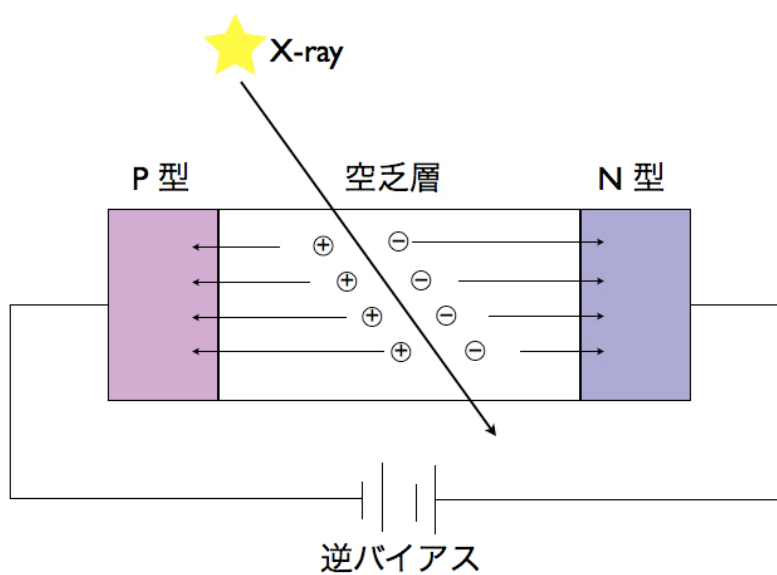


図 1.7: 半導体検出器の測定原理。

ここでは放射線検出器として比較的歴史のあるリチウムドリフト型シリコン Si(Li) 検出器について簡単に述べる。

半導体検出器の構造を図 1.7 に示す。pn 接合に逆バイアスをかけると空乏領域が形成され、この領域にて X 線が吸収され電子・正孔対がその行路に沿って生じる。Si の場合この領域の厚みは数 mm まで可能であり、通常ここに数 100～数 1000 V のバイアスをかけて用いる。半導体検出器の時間分解能は、有感領域を電子または正孔が移動する速さで決まり、2 mm 厚を例にとれば 10～100 nm 程度になる。一つの情報キャリアを生じるのに必要なエネルギー W は、半導体検出器では Si で平均 3.65 eV、Ge で平均 2.96 eV とガス検出器に比べ 1/10 であり高いエネルギー分解能が期待される。Si を用いた半導体検出器のファノ因子 F の典型的な値は 0.1 である。従って式 1.3 を用いると 5.9 keV に対するエネルギー分解能は 120 eV という値を得る。しかしながら実際は、半導体検出器の場合はガス検出器に比べて読み出し回路系に入力される電子の数が少ないため、読み出し回路系の雑音が無視できなくなり、エネルギー分解能の劣化をもたらす。「すざく」に搭載されている HXD(Hard X-ray Detector) による観測帯域のうち低エネルギー側を受け持つ PIN 型シリコン半導体検出器では、2 mm 厚のシリコン PIN フォトダイオード素子を 2 枚重ねにし、有効厚みを 4 mm として用いる。読み出し回路系の雑音を抑えるため低温に冷却して用いる。Einstein 衛星 (米) などでは X 線分光検出器として X 線望遠鏡の焦点面に配置された。

1.2.5 CCD カメラ

ビデオカメラやデジタルカメラなどとしても多用される CCD(Charge Coupled Device) は X 線検出器としても有用である。X 線 CCD カメラは、一つ一つの小さな半導体検出器をモザイク状に並べることにより、前置増幅器からみた静電容量を小さくし、増幅器の雑音レベルを下げることに成功した検出器である。典型的に 5.9 keV の X 線に対して ΔE_{FWHM} は ~ 120 eV 程度となる。長所はメガピクセルの精細撮像能力を持っていることである。多画素の情報を読み出すための仕組みとして、ある画素に入射した X 線光子が生成する電子群を電場によって電荷転送領域に移動させて蓄積し、電極に加える電圧を規則的に変化させることで蓄積された電子群をバケツリレー方式で読み出し口まで転送する。この方法を用いることで画素毎の信号を順番に取り出し、位置情報を再構築することができるが、時間分解能は数 sec 程度と低くなってしまう。現在軌道上で観測を行っている日本の衛星「すざく」には、XIS(X-ray Imaging Spectrometer) として X 線 CCD カメラが搭載されている (図 1.8)。



図 1.8: 「すざく」に搭載されている X 線 CCD カメラ。

1.2.6 超伝導トンネル接合検出器

超伝導トンネル接合検出器 (STJ: Superconducting Tunnel Junction) は、2 枚の超伝導対で薄い絶縁膜を挟んだ構造をしている。STJ 素子にて X 線が光電吸収される際に生成された光電子がクーパー (Cooper) 対を破壊して準粒子 (単独の電子) を作る。STJ ではトンネル効果で絶縁体を通過した準粒子を信号として検出する。超伝導現象を利用するため、 ~ 4 K の極低温にて動作させる必要がある。超伝導状態にある電子が常伝導状態となるのに必要なエネルギー、すなわちクーパー対を一つ破壊するのに必要なエネルギーは数 meV である。エネルギー分解能の限界は情報キャリア数の統計揺らぎによって決まるので、STJ の分解能は半導体検出器に比べ数十倍も良くなると考えられ、原理的には ~ 4 eV のエネルギー分解能を達成することが可能である。

1.2.7 回折格子

回折格子は X 線検出器の中では最も高いエネルギー分解能を得ることができる検出器の一つである。ただし、分散型分光器である回折格子は分散された光だけがエネルギー情報を持つため、非分散型分光器に比べて X 線検出効率が低い。また、分散角が入射 X 線の波長に比例するため、波長の短い (エネルギーの高い) X 線に対しても高いエネルギー分解能を得ることができない。さらに、分散型分光器であるため、空間的に広がった天体に対しては高いエネルギー分解能を得ることができない。つまり、回折格子を用いた観測に適した対象は、軟 X 線で明るい点状の X 線源に制限される。回折格子は X 線望遠鏡とその焦点面の間に配置され、エネルギー分解能は望遠鏡の角度分解能や X 線エネルギーなどに依存する。具体的には $\Delta E_{\text{FWHM}} \propto E^2$ であり、典型的に 1 keV の X 線に対して ΔE_{FWHM} は数 eV 程度となる。現在軌道上で観測を行っている *Chandra* 衛星 (米) には透過型回折格子 (HETG: High Energy Transmission Grating, LETG: Low Energy Transmission Grating)、XMM-Newton 衛星 (欧州) には反射型回折格子 (RGS: Reflection Grating Spectrometer) が搭載されている。

1.2.8 X 線マイクロカロリメータ

X 線マイクロカロリメータは、100% に近い検出効率と半値幅約 10 eV のエネルギー分解能を実現し、さらに空間的に広がった X 線源も観測可能にする。X 線 CCD などほとんどの X 線検出器は X 線による物質のイオン化現象を利用し、イオン化で作られた電子などの電荷を電気信号として取り出す。一方、X 線マイクロカロリメータはこれと全く異なる原理に基づいている。物質に X 線光子が吸収されると、そのエネルギーが熱に変換される。その熱量を測定するのが X 線マイクロカロリメータである。詳しくは次章で述べる。

現在、X 線分光検出器として動作しているマイクロカロリメータには、使用する温度計の違いによっていくつかの種類が存在する。以下に 4 種類のマイクロカロリメータを紹介する。

半導体サーミスタ型 X 線マイクロカロリメータ

半導体サーミスタ型 X 線マイクロカロリメータは、半導体素子の電気抵抗の温度依存性を温度計として用いる。例えば、シリコンに $10^{18} \sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ 程度の不純物をドーピングすることにより ~ 100 mK で大きな感度を持つようになる。温度計の絶対感度 α_R は、半導体素子の抵抗を R とすると、

$$\alpha_R = \frac{d \log R}{d \log T} \quad (1.4)$$

のように表すことができ、典型的に $\alpha_R \sim -6$ 程度を実現することができる。そして、これまでに実験室では 5.9 keV の X 線に対して $\Delta E_{\text{FWHM}} = 3.2$ eV というエネルギー分解能が得られている。日本の X 線

天文衛星「すざく」のXRS(X-Ray Spectrometer)として6×6素子の半導体サーミスタ型X線マイクロカロリメータが搭載され、最初期の観測で $\Delta E_{\text{FWHM}} = 6.7$ eVのエネルギー分解能を達成した実績がある。2014年に打ち上げ予定のX線天文衛星「ASTRO-H」のSXS(Soft X-ray Spectrometer)としても搭載される予定である。

超伝導遷移型X線マイクロカロリメータ

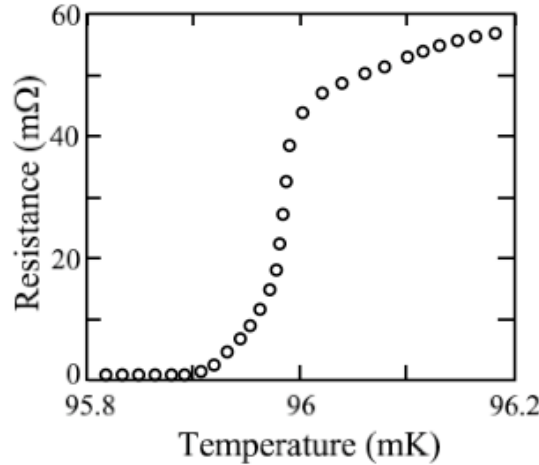


図 1.9: 超伝導薄膜の相転移端。

超伝導遷移 (TES: Transition Edge Sensor) 型X線マイクロカロリメータは、超伝導体を素子として用い、X線の入射、吸収による温度上昇を超伝導遷移端における急激な電気抵抗の変化として測定する。つまり、超伝導体の臨界温度付近の電気抵抗の急激な温度依存性を温度計として用いる (図 1.9)。このタイプの温度計を TES という。TES は X 線マイクロカロリメータだけではなく、赤外線や電波 (マイクロ波、サブミリ波など) のボロメータとしても用いられている。TES 温度計の絶対感度 α_R は、超伝導体素子の電気抵抗を R とすると、式 1.4 によって表すことができ、 $\alpha_R \sim 1000$ という半導体サーミスタ型の 100 倍以上の感度を実現することができる。TES に用いる超伝導体は、Ti/Au や Mo/Cu の 2 層薄膜などが主流である。温度計の感度が向上したことによって、半導体マイクロカロリメータと比べて応答時間が 100 倍程度速くなり、エネルギー分解能は数倍程度増加する。これまでに 5.9 keV の X 線に対して $\Delta E_{\text{FWHM}} = 1.6$ eV というエネルギー分解能が GSFC/NASA により報告されている。また地上の分析装置として、SEM などの EDX(Energy Dispersive X-ray spectrometer) としての研究もすすめられている。

金属磁気型X線マイクロカロリメータ

金属磁気マイクロカロリメータ (MMC: Metallic Magnetic Calorimeter) は素子の温度上昇を電気抵抗の変化として読み取る代わりに、強磁性体の磁化の変化として読み出す (図 1.10)。検出器の温度変化 ΔT によって磁束の変化 $\Delta \Phi$ を生成するセンサーの磁化 M は変化する。このプロセスは、

$$\Delta \Phi \propto \frac{\partial M}{\partial T} \Delta T = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C} = \frac{\partial M}{\partial T} \frac{E}{C_a + C_s} \quad (1.5)$$

によって要約することができ、検出器の総熱容量 C は吸収の熱容量 C_a とセンサーの熱容量 C_s の合計である。常伝導金属中に磁性原子 (エルビウム Er が主流) をドーブした金属磁気温度計に、磁場を印加し磁化量の温度変化を測定する。磁気カロリメータのエネルギー分解能は、素子のフォノンノイズと

SQUID 読み出し系のノイズによって決まる。ドイツのハイデルベルグ大学とアメリカのブラウン大学の共同研究により開発が進められており、エルビウム-金の素子による金属磁気型 X 線マイクロカロリメータでは、5.9 keV の X 線に対して $\Delta E_{\text{FWHM}} = 2.7 \text{ eV}$ というエネルギー分解能が得られている。

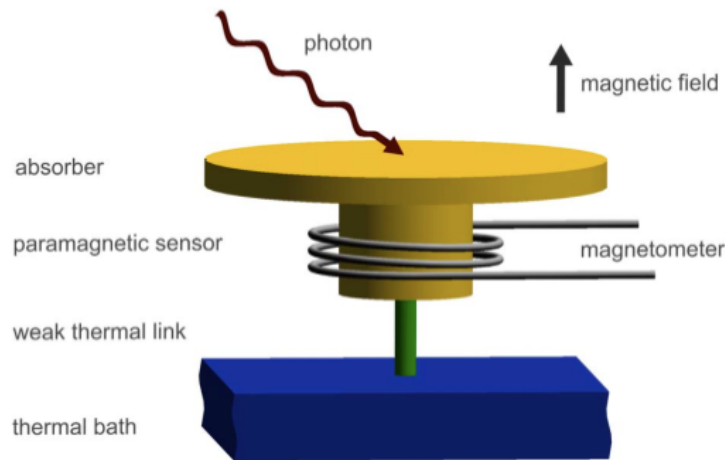


図 1.10: 金属磁気マイクロカロリメータ (MMC) の概要図。

動インダクタンス検出器

動インダクタンス検出器 (KID: Kinetic Inductance Detector) は、光子の入射による温度変化によって Cooper 対の密度が変化することで生じる超伝導体のインダクタンス (動インダクタンス) の変化を温度計として用いる。動インダクタンスの変化は高周波 (GHz) 帯の LC 共振回路を用いて共振周波数の変化を測定することで読み出す。この方法を用いることで、LC 共振回路の並列という簡単な仕組みによって数千もの多素子アレイを実現することができる。最近ではマイクロ波の高感度イメージング検出器としての開発に重点が置かれている (図 1.11)。

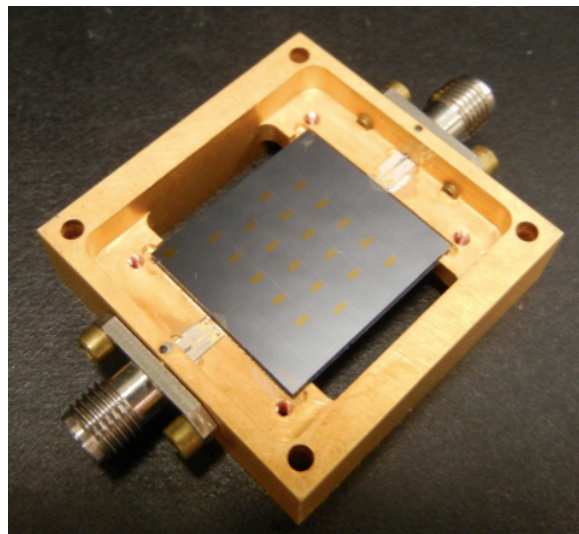


図 1.11: 動インダクタンス検出器 (KID)。

1.3 次世代の X 線分光器に要求される性能

1.12 に近年開発が進められている X 線分光検出器のエネルギー分解能の変遷を示す。X 線天文学初期から X 線検出器の性能は向上し続けており、エネルギー分解能に至っては 3 桁も改善されていることが分かる。これまで宇宙線の観測に用いられてきた X 線検出器としては、撮像に特化したマイクロチャンネルプレートや X 線 CCD カメラ、分光に特化した回折格子などがあるが、次世代の X 線検出器としては広視野に渡って精細な X 線画像が得られる撮像性能と同時に高いエネルギー分解能を合わせ持つ総合的な検出器が必要とされる。

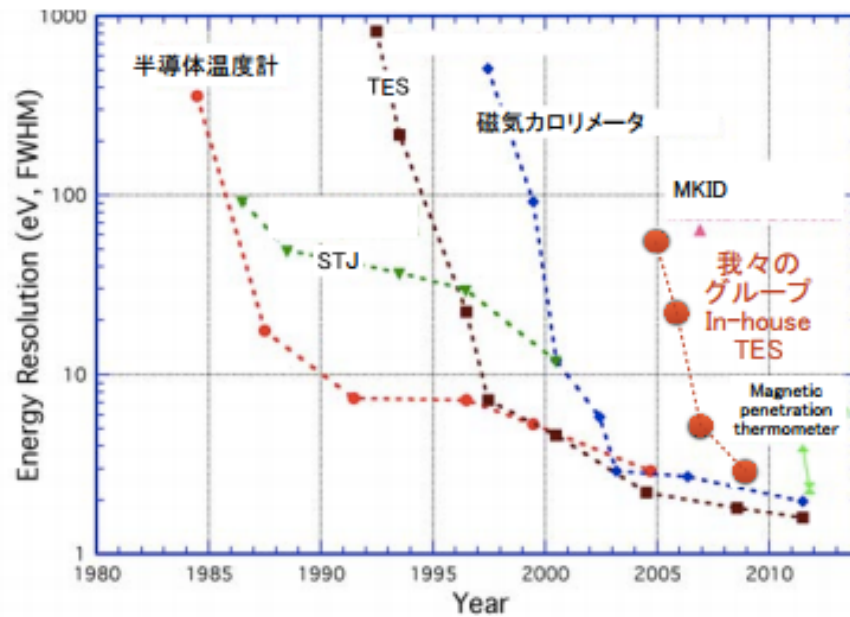


図 1.12: X 線分光検出器のエネルギー分解能の変遷。

1.3.1 ASTRO-H(ひとみ)

ASTRO-H 「ひとみ」とは、2016 年 2 月に種子島宇宙センターより打ち上げられた、日本で 6 番目の X 線天文衛星である。6 × 6 ピクセルの半導体マイクロカロリメータを搭載し、 ~ 5 eV の高い分解能での観測を達成した。これは従来の X 線検出器の 30 倍にも達する分解能である。また、X 線天文衛星でカロリメータによる観測が行われたのはひとみが初めてである。図 ?? にひとみの軟 X 線分光検出器で観測されたペルセウス銀河中心のスペクトルを示す。

1.3.2 Athena

Athena 衛星は欧州宇宙機構 (ESA) を中心とした ASTRO-H に続く大型衛星計画であり、国際協力のもと 2028 年の打ち上げを予定している。サイエンスを目的としては大きく 3 つあり、1 つはブラックホールと降着円盤に関する物理、特に高密度・高重力下の物質に関する研究。2 つ目はあらゆるスケールにおける銀河活動核とスターバーストのフィードバックに関する物理の研究。3 つめは宇宙の大規模構造をトレースしその進化について調べることである。シリコンポアオプティクス技術を用いた大面積、高角度分解能な X 線望遠鏡と高いエネルギー分解能を備えた X 線検出器である TES 型 X 線マイクロカ

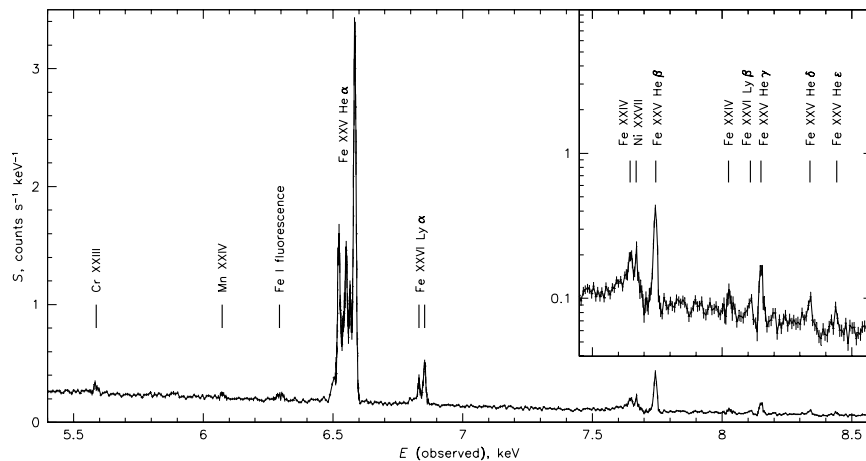


図 1.13: ひとみの SXS で観測したペルセウス銀河中心の全エネルギー帯域でのスペクトル。

ロリメータを搭載する予定である (図 1.14)。検出器の具体的な仕様としては、帯域 0.3 ~ 12 keV でエネルギー分解能 2.5eV、視野 3×3 arcmin が目標とされている。

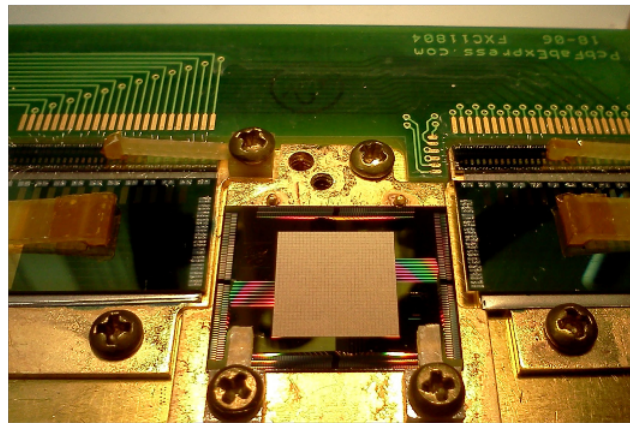


図 1.14: Athena 衛星の X 線分光器 (X-ray Microcalorimeter Spectrometer)

1.3.3 ミッシングバリオン問題

現在の宇宙のエネルギー密度は、ダークエネルギーが約 7 割、物質が 3 割である。さらに物質全体の 8 割は暗黒物質 (ダークマター) と呼ばれる未知の粒子であり、直接観測が可能な通常物質 (バリオン) は物質全体の 2 割、宇宙のエネルギー密度の 5% にすぎない。しかし、現在存在しているバリオンのうち観測にかかるほど高密度で高温のもの、バリオン総量のたった 10% 程度でしかない。他の波長域での観測を合わせても半分程度が直接観測されていないのである。現在の宇宙に存在するバリオンの半分が未だ検出されていないこの問題を「missing baryon 問題」といい、これらのバリオンを総じて dark baryon ないしは missing baryon と呼ぶ。missing baryon は宇宙流体シミュレーションによって、密度が小さい領域については銀河団同士をフィラメント状につなぐ $10^5 \sim 10^7$ 程度のガスとなって分布していることが示唆された。この希薄なガスを総じて中高温銀河間物質 (WHIM: Warm-Hot intergalactic Medium) という。

WHIM は他の温度帯のガスよりも最もダークマターの分布をトレースしていることが のシミュレ

シオンによって言われており、WHIM を広視野で観測することがダークマターの構造を解明することにつながるのである (図 1.15)。 $10^5 \sim 10^7$ 程度のガスは電離酸素のアバンダンスが最も大きく、これらの輝線吸収線が卓越する。WHIM は X 線で明るく輝く銀河団に比べると、温度が低く密度が希薄であるため、熱制動輻射の強度は極めて低く観測することが難しい。明るい活動銀河核を背景光として、WHIM による紫外線や X 線の吸収線の観測も行われているが、この方法で検出できるのは特定の方向にあるガスだけであり、WHIM の広がりや構造を見ることはできない。そこで OVII、OVIII の輝線吸収線を X 線でダイレクトに観測することができれば WHIM の空間分布を明らかにすることができる。現在の X 線検出器では WHIM を観測するに十分なエネルギー分解能と視野を備えていない。そのため missing baryon 問題解決のためには次世代の X 線望遠鏡とよりよい検出器が求められている。

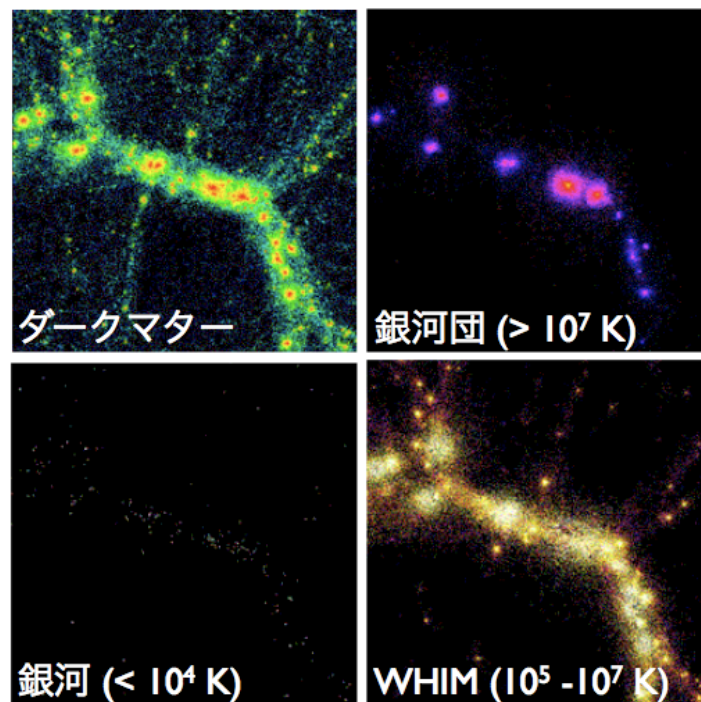


図 1.15: 流体シミュレーションによる銀河団周辺の物質分布。

1.3.4 DIOS ミッション

WHIM 検出のため、我々は軟 X 線精密分光ミッション「*DIOS* (Diffuse Intergalactic Oxygen Surveyor)」を進めている (図 1.16)。*DIOS* ミッションは、宇宙に広がる電離した銀河間物質からの酸素輝線検出を通じて missing baryon の存在とその物理的諸性質を探ることを主目的としたものである。酸素輝線 (OVII(561 eV, 568 eV, 574 eV)、OVIII(653 eV)) を精密 X 線分光することで赤方偏移 $0 < z < 0.3$ の範囲の $10^5 \sim 10^7$ の WHIM を直接検出する。これによって可視光での銀河の赤方偏移サーベイ、X 線の銀河団観測と相補的な新しい宇宙の窓が開かれることが期待できる。それと同時に、OVII と OVIII の輝線吸収線強度比、輝線の微細構造と輝線幅から、ガスの加熱機構、ガスの運動状態なども明らかにする。宇宙の構造形成により一部の物質は銀河や星へとフィードバックし、その一方で余剰なエネルギーは物質と共に銀河空間に放出されたはずである。WHIM はこれらの構造をトレースしている。*DIOS* はこれを明かにし宇宙の構造形成史にも迫る。図 1.17 に *DIOS* の 10 万秒の観測で期待される WHIM からエネルギースペクトルを示す。視線内に存在する WHIM からいろいろな赤方偏移の輝線が見えることがわかる。シミュレーション結果から、輝線に対する感度として約 $10^{11} \text{ erg/cm}^2/\text{sr}$ あれば、全バリ

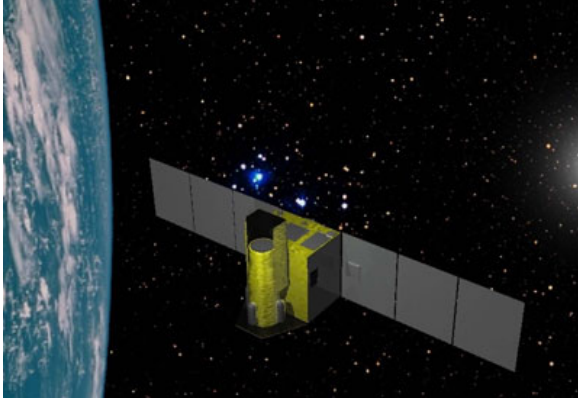


図 1.16: DIOS 衛星。

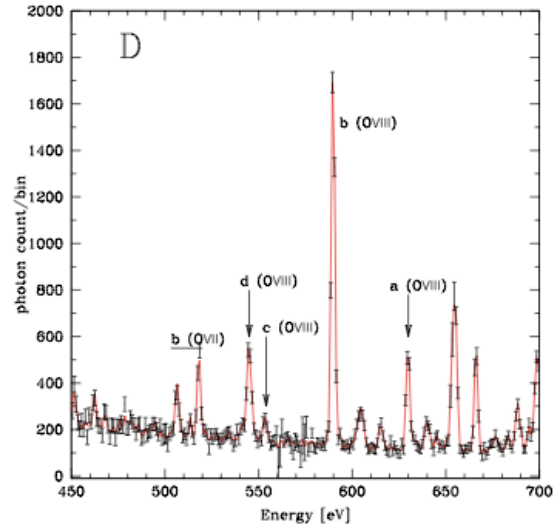


図 1.17: DIOS の 10 万秒の観測で期待される WHIM からのエネルギースペクトル。

オンの 20~30% が検出できると言われている (図 1.18)。ここから観測時間として 1 Msec 程度を仮定すれば、WHIM 検出のために検出器に要求される視野 × 面積は $S\Omega \sim 100 \text{ cm}^2 \text{ deg}^2$ となる。また、図 1.19 は DIOS の視野 × 面積 $S\Omega$ とエネルギー分解能を他の衛星と比較したものである。DIOS は視野 × 面積が非常に大きくまたエネルギー分解能にも優れているため、空間的に広がった輝線に対する検出感度はすざく衛星の 40 倍以上を持つことができる。

このように DIOS は大きく広がった天体に対する X 線分光に特化した観測装置である。DIOS に搭載する検出器として以下に示す TES 型マイクロカロリメータを極低温下 (50 mK) で用いる必要がある。さらに望遠鏡との兼ね合いから決まる有効面積を広げるために、TES カロリメータを 20×20 素子以上のアレイ化にしなければならない。現在、首都大、宇宙研をはじめとした我々の研究グループではカロリメータ素子のアレイ化に向けた研究がなされている。

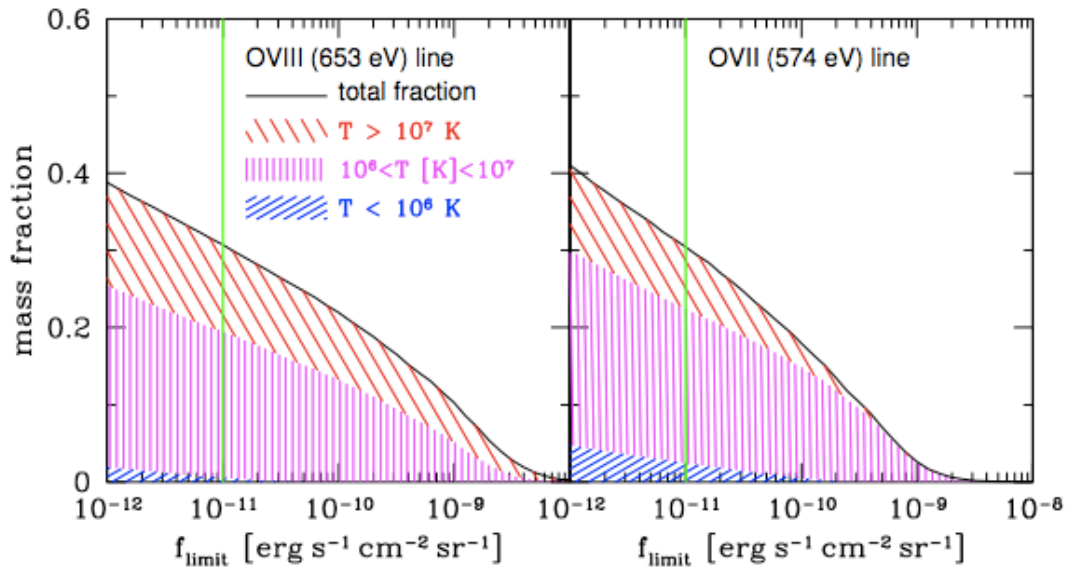


図 1.18: 2 種類の酸素輝線を使って検出できる近傍宇宙のダークバリオンの割合 (横軸: 検出器の検出限界、緑の縦線: DIOS の典型的な検出限界)。

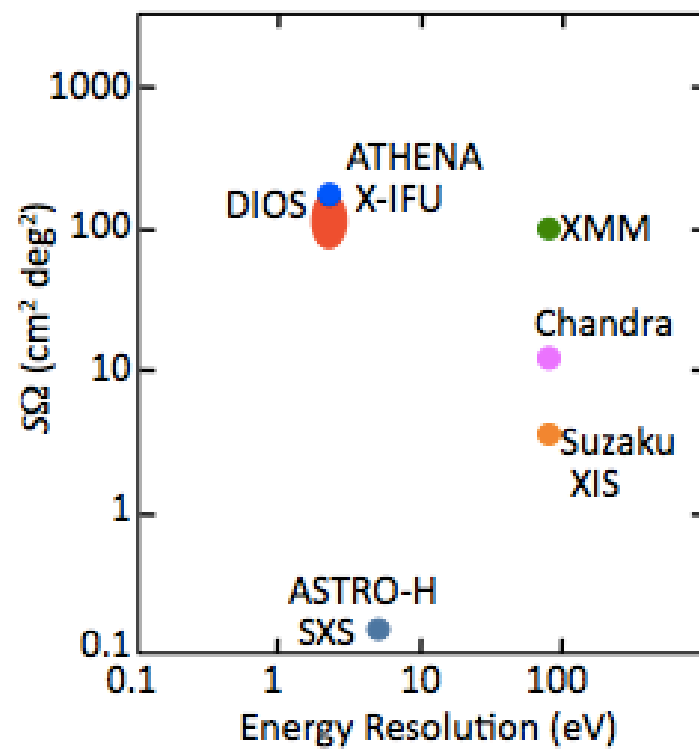


図 1.19: いろいろなミッションの広がった輝線放射に対する観測能力の比較 (縦軸: 視野 × 面積、横軸: エネルギー分解能)。

第2章 TES 型 X 線マイクロカロリメータ

超伝導遷移端の急激な抵抗変化を利用する TES 型 X 線マイクロカロリメータ (以下、TES カロリメータ) を開発するにあたって、その超伝導の性質を理解することが重要である。この章では TES カロリメータの原理と世界の開発状況について述べる。

2.1 X 線マイクロカロリメータの構造

X 線マイクロカロリメータ (以下、マイクロカロリメータ) は、入射 X 線光子の 1 つ 1 つのエネルギーを素子の温度上昇として測る検出器である。入射する X 線の温度上昇は極めて小さいものであるが (～数 mK)、素子を 100 mK 付近の極低温で動作させ、さらに高感度の温度計を用いることで微小な温度上昇を計測できる。マイクロカロリメータは図 2.1 に示すように、温度 T に冷やされた熱容量 C の吸収体と温度計からなる構造をしており、適度に悪い熱伝導度 G を持つサーマルリンクを通じて、より低温の熱浴と接続され、定常状態に保たれている。各構成要素の役割を表 2.1 に示す。

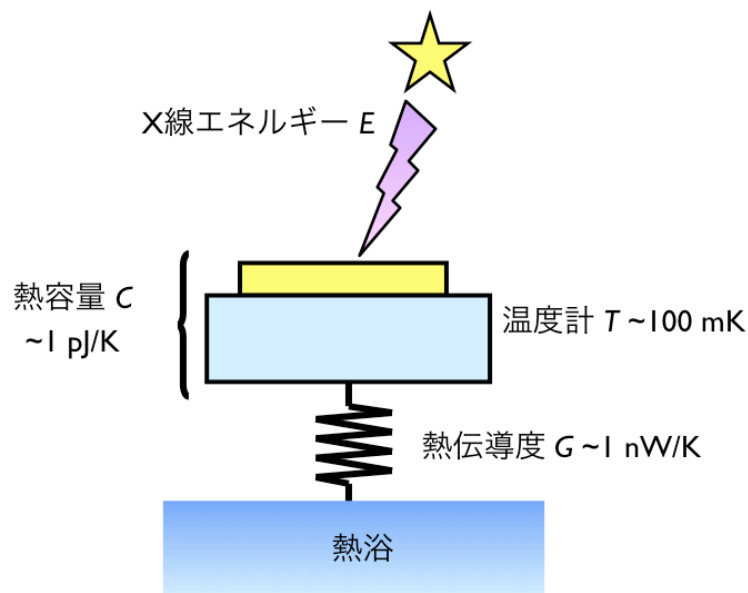


図 2.1: マイクロカロリメータの構造

マイクロカロリメータの素子は、入射 X 線のエネルギーを高い効率で光電吸収する X 線吸収体としての能力と素子の温度上昇を高い精度で測定する温度計としての能力を持ち合わせている必要がある。また、X 線が入射した際に素早く熱化し、十分熱化した後に素早く熱拡散する必要性もある。

2.1.1 吸収体

素子に入射した X 線は光電吸収によってエネルギーを失う。マイクロカロリメータでは高い確率で吸収体中で X 線を止め、そのエネルギーを完全に熱エネルギーに変える必要がある。吸収体には原子番号

表 2.1: マイクロカロリメータを構成する要素の役割。

構成要素	役割
X 線吸収体	光子を吸収し、入射エネルギーを熱に変換する 発生した熱を全て温度計に入力する
温度計	吸収体にて生じた温度変化を電気信号に変換する
熱リンク	発生した熱をヒートシンクに排出する
熱浴 (ヒートシンク)	系の温度を初期値に保つ

の大きい物質を用い、その面積と厚さを増すことで検出効率を高くすることが可能である。しかし、素子が大きくなるとその分熱容量が大きくなるので、エネルギー分解能が悪くなる。また、熱化にかかる時間が遅いと吸収した熱が逃げてしまうので、エネルギー分解能が悪化する。以上より、吸収体として用いる物質には高い吸収効率、小さい熱容量、速い熱化という条件を同時にクリア可能な物質が適している。

以下に物質の種類に応じた特徴を挙げる。

- 絶縁体と半導体

絶縁体や半導体はバンドギャップの不純物準位に電子がトラップされ、準安定な状態を形成する。そのため熱化が不完全であったり、安定性に欠ける。

- 準金属

ビスマス、水銀テルルなどの準金属は熱化が比較的速いが、デバイ温度が低く格子比熱が大きい。すぎく衛星に搭載された XRS では水銀テルルを用いている。

- 常伝導金属

純粋な常伝導金属は熱化が非常に速いが、電子比熱が大きいため検出器のサイズが限られる。

- 超伝導金属

超伝導金属は超伝導遷移温度よりも十分に低温に於いて、電子比熱が小さくなる。従って、原子番号が大きく、デバイ温度の高いものを用いれば比熱を押えつつ高い検出効率を実現できる。しかし、超伝導遷移温度よりも充分な低温では準粒子を生成する。再結合をするまでの時間、つまり準粒子の寿命が長い影響で熱化が非常に遅くなる。

2.1.2 温度計

半導体や金属の温度に依存した抵抗変化を測定することで、X 線フォトン入射時の温度変化を調べることができる。温度計の感度を表すパラメータ α を、

$$\alpha \equiv \frac{d \ln R}{d \ln T} = \frac{R}{T} \frac{dR}{dT} \quad (2.1)$$

として定義する。この値は無次元量であり、 α が大きい程温度変化に対する感度が高く、小さい温度変化でも精密に測定することができる。

2.2 X 線マイクロカロリメータの原理

マイクロカロリメータを用いた X 線観測では、素子は極低温に冷却され、一定の温度に保たれる。この時の温度を動作点と呼ぶことにする。吸収体に入射した X 線光子は光電吸収され、即座にそのエネル

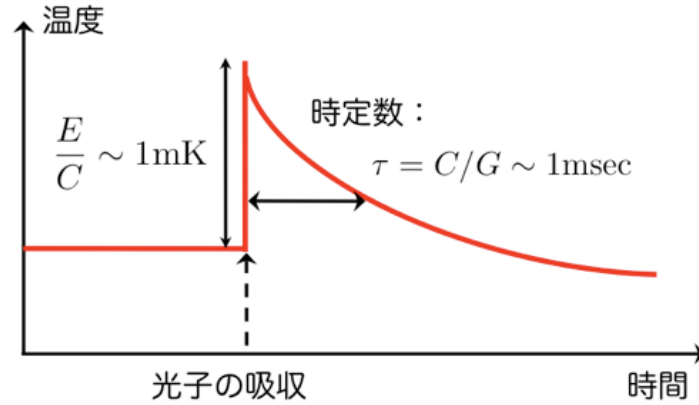


図 2.2: X線入射によるマイクロカロリメータの温度変化。

ギーのほとんどが熱に変わる。この際に生じる温度上昇 ΔT は

$$\Delta T = \frac{E}{C} \quad (2.2)$$

となる (図 2.2)。厳密には入射 X 線による素子の温度上昇で C も変化するので、エネルギーと温度上昇の関係には非線形性がある。吸収体で生じた熱はサーマルリンクを介して低温熱浴へとゆっくりと流れ、再び定常状態へと戻る。素子が定常状態に戻るまでの時定数 τ は、 C と G で決まる。典型的に数 $100 \mu\text{sec}$ 程度である。ここで C と G はそれぞれ温度計を含めたカロリメータ素子の熱容量と熱リンクの熱伝導度である。従って温度上昇 ΔT を測れば光子のエネルギーを測定できる。

$$\tau = \frac{C}{G} \quad (2.3)$$

この時、温度測定の精度は熱リンクを通してランダムに熱が入り出すことによって生じる素子の温度揺らぎ (Phonon ノイズ) で原理的に決まってしまう。その大きさは直感的に見積もることができる。温度 T の物質中のフォノンの平均のエネルギー ε は

$$\varepsilon = k_B T \quad (2.4)$$

である。一方、熱容量 C の物質の持つ全エネルギーは CT であるので、平均のフォノンの数 N は以下ようになる。

$$N = \frac{CT}{k_B T} \quad (2.5)$$

フォノンの数の統計的な揺らぎはポアソン分布に従うので、その分散は

$$\sigma(N) = \sqrt{\frac{CT}{k_B T}} \quad (2.6)$$

となる。これから、温度の分散は

$$\sigma(T) = \frac{\sigma(N)k_B T}{C} \quad (2.7)$$

となり、フォノン数の揺らぎによる素子のエネルギー分解能は

$$\sigma(E) = \sigma(N)k_B T = \sqrt{\frac{CT}{k_B T}} k_B T = \sqrt{k_B T^2 C} \quad (2.8)$$

と見積もられる。マイクロカロリメータにおいて高いエネルギー決定精度 (エネルギー分解能) を実現するためには、信号雑音比をできるだけ大きくして、素子の温度上昇を精密に測定する必要がある。信号量を大きくするためには、X 線エネルギーを大きな温度上昇に変えてそれを高感度の温度計で測定すればよい。また、素子の熱容量 C が低温では温度に強く依存することがわかる。ここで、 C として格子比熱および電子比熱を考える。フェルミ (Fermi) 温度とデバイ (Debye) 温度よりもはるかに低い温度に於いては、金属の定積比熱 c はフォノンに起因する格子比熱 c_l と伝導電子に起因する電子比熱 c_e との和として、

$$c = c_l + c_e = \alpha T^3 + \gamma T \quad (2.9)$$

と書ける。これよりそれぞれ温度の 3 乗および 1 乗に比例し、エネルギー分解は温度の 5/2 から 3/2 乗に比例する。よって、素子の動作温度を可能な限り低くすることも重要である。現実的に T は冷凍機によって安定に保持することができる ~ 100 mK が主流である。典型的に C は最小 pJ/K オーダーとなり、結局、keV オーダーの X 線エネルギーを最大 mK オーダーという微小な温度上昇として測定することになる。これを精密に測定するためには高感度の温度計とノイズの抑制が必要となる。

2.3 超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensor)

私たちのグループでは、温度計に超伝導遷移端温度計 (TES: Transition Edge Sensors) を採用している。この温度計に超伝導物質を用い、超伝導-常伝導相転移端の急激な抵抗-温度変化により素子の温度上昇を計測する仕組みである。遷移幅は典型的には数 mK という非常に狭い温度範囲で起こるため、温度計の感度 α は従来使用されてきた半導体温度計より遥かに高い感度を有する。典型的に $\alpha \sim 1000$ 程度が可能であり、半導体マイクロカロリメータにと比較すると 100 倍程度向上する。これにより応答速度、分解能を著しく改善する事が可能になる。以下に相転移点付近での温度に対する抵抗の変化の様子を示す。

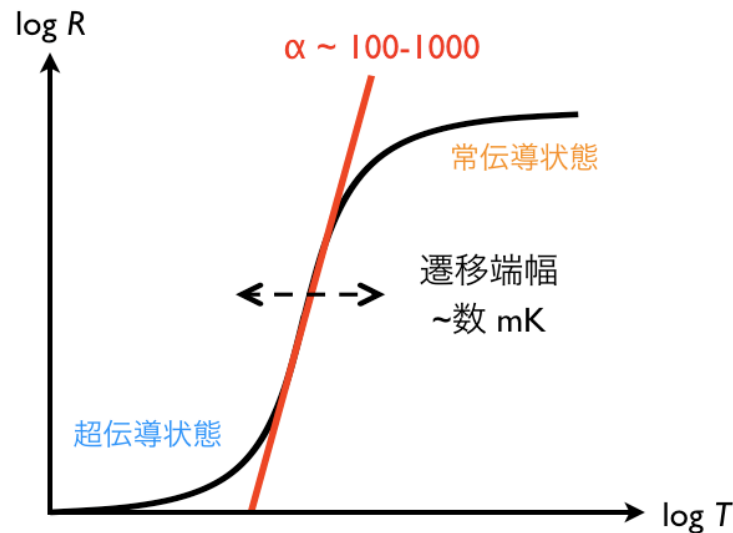


図 2.3: 相転移点付近での温度に対する抵抗の変化。

2.4 ノイズとエネルギー分解能

TES カロリメータにはいくつかのノイズが存在しており、これらがエネルギー分解能に制限を与えている。熱リンクを通して熱がランダムに流れ発生する温度揺らぎ (Phonon ノイズ) や温度計の抵抗に発生する電氣的な熱雑音 (Johnson ノイズ) などである。この他にも測定系セットアップに起因した外来ノイズ (読み出しノイズ) や、吸収体 - TES 間の熱揺らぎなど製作方法に依存した内因的ノイズ、原因不明の超過ノイズ (Excess ノイズ) が存在する。図 2.4 は理想的な TES カロリメータの典型的な Phonon ノイズと Johnson ノイズ、読み出し回路系のノイズを仮定した場合の X 線信号の電力スペクトルとノイズの電力スペクトル密度である。phonon ノイズのスペクトル密度は、信号の周波数応答と同じ形をしていて、回路系が応答できない周波数帯では急激に小さくなる。これに対して、Johnson ノイズはのフィードバックループを回った成分と直接出力に現れる成分が互いに打ち消しあうので回路系が応答する周波数帯域では逆に小さくなる。読み出し装置として低雑音の SQUID(2.6 節) を用いると読み出しノイズは、Phonon ノイズと Johnson ノイズの和よりも図 2.4 に示すように小さくすることが可能である。

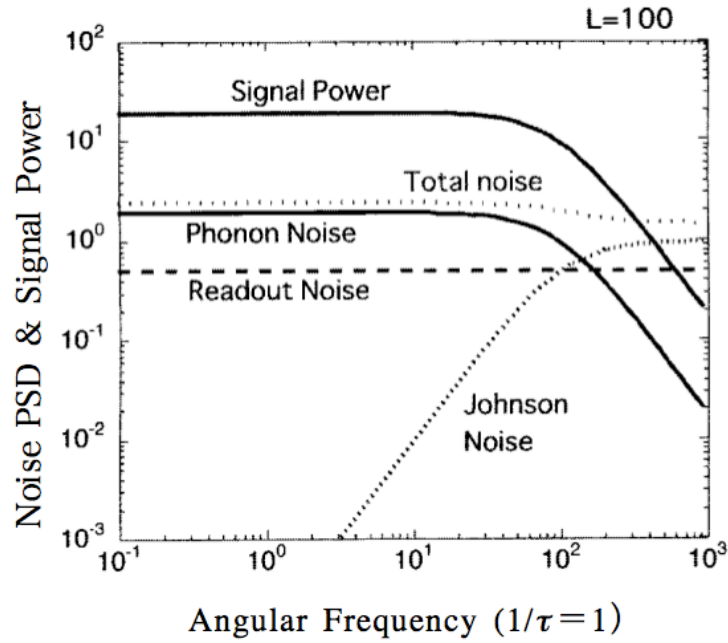


図 2.4: 理想的な TES 型 X 線マイクロカロリメータの X 線信号の電力スペクトルとノイズの電力スペクトル密度。

Phonon ノイズを考慮した原理的なエネルギー分解能は

$$\Delta E \simeq 2.35 \sqrt{\frac{4k_B T^2 C}{\alpha}} \sqrt{\frac{n}{2}} \quad (2.10)$$

と一般的に表される。ここで、 ΔE は検出器のエネルギー分解能を半値幅で定義したもので (1.2.1 節)、 $\Delta E = 2\sqrt{2\ln 2}\sigma(E) = 2.35\sigma(E)$ である。 α は温度計の感度 (式 2.1) であり、 n は熱伝導度の温度依存性による項である。式 2.10 に TES カロリメータの典型的な値を代入すると、

$$\Delta E \simeq 1.3\text{eV} \left(\frac{T}{100\text{mK}} \right) \left(\frac{C}{1\text{pJ/K}} \right)^{1/2} \left(\frac{\alpha}{100} \right)^{-1/2} \quad (2.11)$$

と理想的な TES カロリメータのエネルギー分解能を見積もることができる。 n は電子-フォノン相互作用により 5 を代入している。式 2.10 より、より高いエネルギー分解能を実現させるには『動作温度 T

を下げ、素子の熱容量 C を抑え、温度計感度 α を大きくすること』が必要である。しかし、ある程度の制限も存在する。X 線光子のエネルギーが大きいと温度変化によって遷移端から外れてしまい、エネルギー分解能は式で得られた理論値より悪くなってしまう。よって入射 X 線の最大エネルギー E_{max} は

$$\Delta E_{max} \simeq \frac{CT}{\alpha} = 6.3\text{keV} \left(\frac{T}{100\text{mK}} \right) \left(\frac{C}{1\text{pJ/K}} \right) \left(\frac{\alpha}{100} \right)^{-1} \quad (2.12)$$

と制限される。つまり、目標とするエネルギーバンドとエネルギー分解能を考慮した上で、最適な α と C を見積もる必要がある。Johnson ノイズも考慮すると式 2.10 は

$$\Delta E \simeq 2.35 \sqrt{\frac{4k_B T^2 C}{\alpha}} \sqrt{\frac{n}{2}(1+2\beta)(1+M^2)} \quad (2.13)$$

となり、式 2.12 を代入すると

$$\Delta E \simeq 2.35 \sqrt{4k_B T} \sqrt{\frac{n}{2}(1+2\beta)(1+M^2)E_{max}} \quad (2.14)$$

と表すことができる。ここで、 β は TES の電流感度であり、 $\beta = d\ln R / d\ln I$ で表される。また M は Excess ノイズのファクターである。

2.5 電熱フィードバック (ETF: Electro-Thermal Feedback)

TES は温度計として非常に高い感度を持っているが、感度を持つ温度域、つまり超伝導遷移幅が非常に狭い ($\sim 1\text{mK}$)。この狭い温度範囲に動作点を制御するには、TES を定電圧バイアスで動作させ、強いフィードバックをかけることで実現する。

2.5.1 電熱フィードバック下の温度変化に対する応答

図 2.5 左に示すような定電圧バイアスで TES を動作させた場合を考える。熱入力によって温度が上昇すると、TES の抵抗値は急激に増加する。定電圧なので電流は減少し、ジュール発熱も減少する。このように、熱入力を打ち消す方向にジュール発熱量が急激に変化して負のフィードバックが働くので、素子の温度も安定に保たれる。

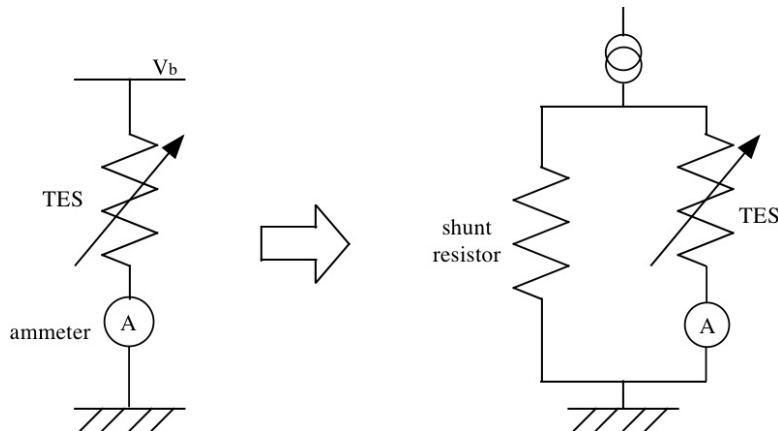


図 2.5: 左図: 定電圧バイアス 右図: ショント抵抗を使って疑似的に作る定電圧バイアス

実際には TES と並列にシャント抵抗をつないで、疑似的に定電圧バイアスを実現する (図 2.5 右)。以下では理想的な定電圧バイアスで動作しているものとする。

熱伝導度は

$$G \equiv dP/dT \quad (2.15)$$

で定義される。一般的に熱伝導度は温度依存性を持ち、

$$G = G_0 T^{n-1} \quad (2.16)$$

と温度に対するべき n を用いて表され、3~5 程度である。熱浴と TES との間の熱伝導度を考える。一般に $T \gg T_{bath}$ であるので、熱浴との熱伝導度による熱の流れは

$$P = \int_{T_{bath}}^T G dT = \frac{G_0}{n} (T^n - T_{bath}^n) \quad (2.17)$$

と式 (2.15) を積分して計算できる。

平衡状態では、TES の温度を T_0 として、TES におけるジュール発熱 $P_b \equiv V_b^2/R_0$ とカロリメータピクセルから熱浴へ流れる熱量とがつり合っているので、

$$P_b = \frac{G_0}{n} (T_0^n - T_{bath}^n) \quad (2.18)$$

と書ける。ただし、 V_b はバイアス電圧、 G_0 は $G = G_0 T^{n-1}$ を満たす定数 (G は熱伝導度)、 R_0 は動作点での TES の抵抗値、 T_{bath} は熱浴の温度である。

微小な温度上昇 $\Delta T \equiv T - T_0$ によって素子の温度が T になった場合、内部エネルギーの変化は熱の収支に等しいので、

$$C \frac{dT}{dt} = \frac{V_b^2}{R(T)} - \frac{G_0}{n} (T^n - T_{bath}^n) \quad (2.19)$$

が成り立つ。温度上昇 ΔT は 1 次の近似で、

$$C \frac{d\Delta T}{dt} \simeq -\frac{V_b^2}{R_0^2} \Delta R - G_0 T^{n-1} \Delta T \quad (2.20)$$

$$= \frac{P_b \alpha}{T} \Delta T - G \Delta T \quad (2.21)$$

となる。

最後の項の G は TES の温度 T での熱伝導度 $G(T)$ を表す。以後単に G と書いた場合は TES の温度 T での熱伝導度を表すこととする。式 (2.20) の解は、

$$\Delta T = \Delta T_0 \exp \left(-\frac{t}{\tau_{\text{eff}}} \right) \quad (2.22)$$

と書ける。ただし、

$$\tau_{\text{eff}} \equiv \frac{C/G}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} \quad (2.23)$$

$$= \frac{\tau_0}{1 + \frac{P_b \alpha}{GT}} \quad (2.24)$$

は有効時定数である。式 (2.18)、(2.24) より、 τ_{eff} は

$$\tau_{\text{eff}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n} \left(1 - \left(\frac{T_{\text{bath}}}{T} \right)^n \right)} \quad (2.25)$$

のように書ける。さらに、熱浴の温度が TES の温度よりも十分に低い場合 ($T_{\text{bath}}^n \ll T^n$) は、

$$\tau_{\text{eff}} = \frac{\tau_0}{1 + \frac{\alpha}{n}} \quad (2.26)$$

$$\approx \frac{n}{\alpha} \tau_0 \quad (2.27)$$

と近似できる。ただし、式 (2.27) は $\alpha/n \gg 1$ の場合である。このように、 α が大きい場合は、電熱フィードバックによって応答速度が非常に速くなることがわかる。また、X 線のエネルギーは電流値の変化として読み出され、

$$\Delta I = \frac{V_b}{R(T_0 + \Delta T)} - \frac{V_b}{R(T_0)} \quad (2.28)$$

$$\simeq -\frac{\Delta R}{R} I \quad (2.29)$$

$$\simeq -\alpha \frac{E}{CT} I \quad (2.30)$$

となる。

2.5.2 電熱フィードバックの一般論と電流応答性

定電圧バイアスで動作するカロリメータに、時間に依存する微小なパワー $\delta P e^{i\omega t}$ が入射したときの応答について考える。系の応答は線型であり、入射 $\delta P e^{i\omega t}$ に対する温度変化は $\delta T e^{i\omega t}$ で表されるとする。フィードバックがかかっていないときは、

$$P_{bgd} + \delta P e^{i\omega t} = \bar{G} (T - T_{\text{bath}}) + G \delta T e^{i\omega t} + i\omega G \delta T e^{i\omega t} \quad (2.31)$$

が成り立つ。ただし、 P_{bgd} はバックグラウンドパワー、 \bar{G} は平均の熱伝導度である。定常状態では、

$$P_{bgd} = \bar{G} (T - T_{\text{bath}}) \quad (2.32)$$

である。(2.31) 式と (2.33) 式から、 δT は δP を用いて

$$\delta T = \frac{1}{G} \frac{1}{1 + i\omega \tau_0} \delta P \quad (2.33)$$

と表される。ここで、 $\tau_0 \equiv C/G$ は系の固有時定数である。電熱フィードバックがかかった状態では、エネルギー保存の式は、

$$P_{bgd} + \delta P e^{i\omega t} + P_b + \delta P_b e^{i\omega t} = \bar{G} (T - T_{\text{bath}}) + G \delta T e^{i\omega t} + i\omega C \delta T e^{i\omega t} \quad (2.34)$$

となる。また、定電圧バイアスでは以下の関係が成り立つ。

$$\delta P_b e^{i\omega t} = \frac{dP_b}{dI} \delta I e^{i\omega t} = V_b \delta I e^{i\omega t} \quad (2.35)$$

$$\delta I e^{i\omega t} = \frac{dI}{dR} \delta R e^{i\omega t} = \frac{d}{dR} \left(\frac{V_b}{R} \right) \delta R e^{i\omega t} = -\frac{V_b}{R^2} \delta R e^{i\omega t} \quad (2.36)$$

$$\delta R e^{i\omega t} = \frac{dR}{dT} \delta T e^{i\omega t} = \alpha \frac{R}{T} \delta T e^{i\omega t} \quad (2.37)$$

これらを用いると (2.34) 式は、

$$P_{bgd} + \delta P e^{i\omega t} + \frac{V_b^2}{R} - \frac{V_b^2}{R^2} \frac{dR}{dT} \delta T e^{i\omega t} = \bar{G} (T - T_{bath}) + G \delta T e^{i\omega t} + i\omega C \delta T e^{i\omega t} \quad (2.38)$$

と書き換えられる。(2.38) 式の解は、

$$\begin{aligned} \delta T e^{i\omega t} &\equiv \frac{1}{\alpha \frac{P_b}{T} + G + i\omega C} \delta P e^{i\omega t} \\ &= \frac{1}{G} \frac{1}{1 + \frac{\alpha P_b}{GT}} \frac{1}{1 + i\omega \tau_{eff}} \delta P e^{i\omega t} \end{aligned} \quad (2.39)$$

ここで、

$$\tau_{eff} \equiv \frac{1}{1 + \frac{\alpha P_b}{GT}} \frac{C}{G} \quad (2.40)$$

は、電熱フィードバックがかかった状態での実効的な時定数である。

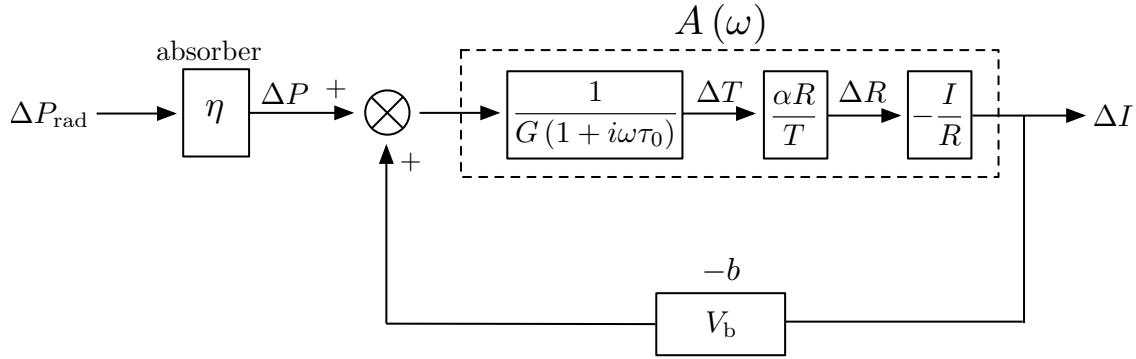


図 2.6: 電熱フィードバックのダイアグラム

一般的なフィードバックの理論に当てはめると、電熱フィードバックの系は図 2.6 のように表すことができる。フィードバック量 b と系のループゲイン $\mathcal{L}(\omega)$ はそれぞれ

$$b = -V_b \quad (2.41)$$

$$\mathcal{L}(\omega) = \frac{1}{G(1+i\omega\tau_0)} \times \alpha \frac{R}{T} \times \left(-\frac{1}{R} \right) \times (-V_b) = \frac{\alpha p_b}{GT} \frac{1}{G(1+i\omega\tau_0)} \equiv \frac{\mathcal{L}}{1+i\omega\tau_0} \quad (2.42)$$

と書ける。ただし

$$\mathcal{L}_0 \equiv \frac{\alpha P_b}{GT} \quad (2.43)$$

は周波数 0 でのループゲインである。ループを閉じた場合の伝達関数

$$S_I(\omega) \equiv \frac{\delta I}{\delta P} \quad (2.44)$$

は \mathcal{L} を用いて、

$$\begin{aligned} S_I(\omega) &= \frac{1}{b} \frac{\mathcal{L}(\omega)}{1 + \mathcal{L}(\omega)} \\ &= -\frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{\mathcal{L}_0 + 1 + i\omega\tau_0} \\ &= -\frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}_0}{1 + \mathcal{L}_0} \frac{1}{1 + i\omega\tau_{eff}} \end{aligned} \quad (2.45)$$

と書ける。ただし、

$$\tau_{eff} \equiv \frac{\tau}{\mathcal{L}_0 + 1} \quad (2.46)$$

である。ループゲインが十分に大きい場合 ($\mathcal{L}_0 \gg 1$)

2.6 SQUID を用いた読み出し系

TES の電流変化を読み出すには、低ノイズ、低インピーダンスの電流計が必要である。その点で、SQUID は最良の電流計である。

2.6.1 dc-SQUID

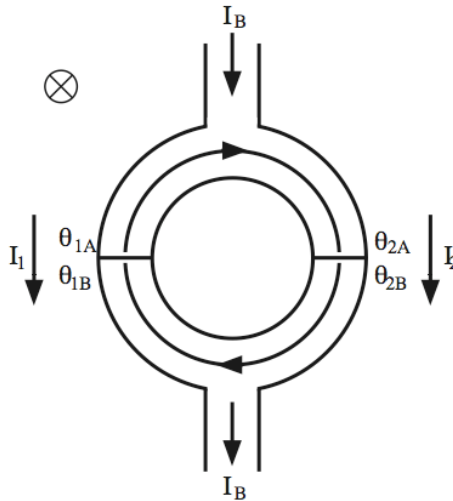


図 2.7: dc-SQUID の模式図

SQUID (Superconducting QUantum Interference Device) とはジョセフソン効果を利用した素子で、図 2.7 のように 2 つのジョセフソン接合を並列に持つリングである。2 つの接合の位相差とリングを貫く磁束との間には

$$\theta_2 - \theta_1 = 2\pi \frac{\Phi}{\Phi_0} \quad (2.47)$$

という関係がある。ただし、 θ_1 と θ_2 はそれぞれのジョセフソン接合での位相差、 Φ はリングを貫く磁束、 Φ_0 は磁束量子で、

$$\Phi_0 \equiv h/2e = 2.06 \times 10^{-15} \text{ Wb} \quad (2.48)$$

という定数である。ジョセフソン接合が超伝導状態のとき、バイアス電流 I_B は

$$I_B = I_0 \cos \left(\pi \frac{\Phi_{\text{exp}}}{\Phi_0} \right) \sin \left(\theta_1 - \pi \frac{\Phi_{\text{exp}}}{\Phi_0} \right) \quad (2.49)$$

となる。ただし、 I_0 は接合の臨界電流、 $\Phi_{\text{ext}} \equiv \Phi - LJ$ は外部磁束、 L と J はリングの自己インダクタンスとリングを循環する電流である。したがって、SQUID が超伝導でいられる最大の電流、すなわち SQUID の臨界電流は

$$I_{\text{max}} = 2I_0 \left| \cos \left(\pi \frac{\Phi_{\text{ext}}}{\Phi_0} \right) \right| \quad (2.50)$$

となる。このように、SQUID の臨界電流は外部磁束によって変化する。 $2I_0$ より大きなバイアス電流で SQUID を動作させると、臨界電流が変化することにより、外部磁束の変化に対して出力電圧が変化するようになる。したがって、SQUID の隣にコイルを置くことによって、SQUID を非常に感度の高い電流計として扱うことが可能になる。カロリメータの読み出し系として SQUID を用いた場合の模式図を図 2.8 に示す。

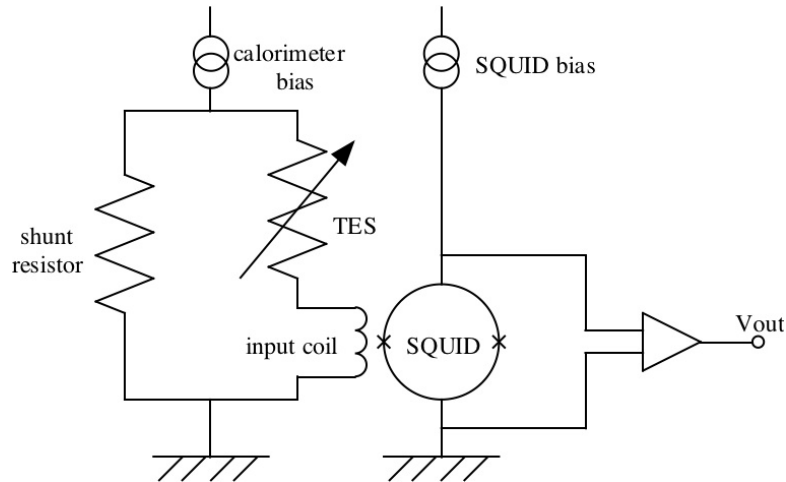


図 2.8: SQUID を用いたカロリメータの読み出し系

2.7 ノイズとエネルギー分解能

エネルギー分解能を見積もるためにはノイズレベルを評価しなければならない。ノイズには、バックグラウンドの放射、熱浴の温度揺らぎ、外部磁場、 $1/f$ ノイズ、rf ノイズなど様々な起源のものが存在する。その中でも、ジョンソンノイズとフォノンノイズは X 線マイクロカロメータを使う限り避けることができず、原理的なエネルギー分解能はこれらで制限される。また、前置アンプなどの読み出し系ノイズも大きく寄与することが多い。ここではジョンソンノイズとフォノンノイズについて述べる。

2.7.1 固有ノイズ

マイクロカロリメータには二種類の固有ノイズ源がある。一つは、温度計の抵抗で発生するジョンソンノイズ、もう一つは熱浴との熱伝導度が有限であるために発生する熱揺らぎ (フォノンノイズ) である。図 2.5 は、これらのノイズの寄与も含めた電熱フィードバックのダイアグラムである。フォノンノイズは熱起源であるので、信号と同じ部分に入力される。これに対して、ジョンソンノイズはカロリメータの抵抗に起因するため、フォノンノイズとは伝達の仕方が異なる。微小な熱揺らぎ δP_{ph} がもたらす電流の揺らぎは、

$$\begin{aligned}\delta I_{ph} &= -\frac{1}{V_b} \frac{\mathcal{L}(\omega)}{1 + \mathcal{L}(\omega)} \delta P_{ph} \\ &= S_I \delta P_{ph}\end{aligned}\quad (2.51)$$

である。これより、フォノンノイズの電流密度は、

$$\begin{aligned}\delta I_{ph}^2 &= |S_I|^2 \delta P_{ph}^2 \\ &= -\frac{1}{V_b^2} \left(\frac{\mathcal{L}_0}{1 + \mathcal{L}_0} \right)^2 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau_{eff}^2} \delta P_{ph}^2\end{aligned}\quad (2.52)$$

となる。フォノンノイズのパワースペクトル密度は $0 \leq f < \lim$ 空間で

$$\begin{aligned}\delta P_n^2 &= 4k_B G T^2 \frac{\int_{T_{bath}}^2 \left(\frac{t_{\kappa}(t)}{T_{\kappa}(T)} \right)^2 dt}{\int_{T_{bath}}^T \left(\frac{t_{\kappa}(t)}{T_{\kappa}(T)} \right) dt} \\ &\equiv 4k_B G T^2 \Gamma\end{aligned}\quad (2.53)$$

と表される。ただし、 $\kappa(T)$ はサーマルリンクを構成する物質の熱伝導率である。 $\theta \equiv T_{bath}/T$ とし、 $\kappa(T)$ は $\kappa(T) = \kappa(T_{bath})\theta^{-(n-1)}$ と表されると仮定すると、 Γ は

$$\Gamma = \frac{n}{2n+1} \frac{1 - \theta^{(2n-1)}}{1 - \theta^n}\quad (2.54)$$

となる。(2.53) 式を (2.52) 式に代入すると、フォノンノイズの電流密度は、

$$\begin{aligned}\delta I_{ph}^2 &= 4k_B G T^2 |S_I|^2 \\ &= \frac{4K_B G T \Gamma^2}{V_b^2} \left(\frac{\mathcal{L}_0}{1 + \mathcal{L}_0} \right)^2 \frac{1}{1 + \omega^2 \tau_{eff}^2}\end{aligned}\quad (2.55)$$

と表せる。一方、ジョンソンノイズ δV_J による電流の揺らぎ $\delta I_{0,J}$ は、

$$\delta I_{0,J} = \frac{\delta V_J}{R}\quad (2.56)$$

である。

2.7.2 最適化フィルタ

最適化フィルタ処理では、異なる X 線エネルギーに対する X 線パルスの波形が相似であると仮定し、周波数空間で χ^2 フィッティングを行う。

実測によって得られたパルスを $D(t)$ とし、周波数空間にて

$$D(f) = A \times M(f) + N(f)\quad (2.57)$$

と表されとする。ここで $M(f), N(f)$ はそれぞれ理想的なパルスとノイズのスペクトルであり、 A は振幅を表す。実際に得られたパルスとモデルパルスの差が小さくなるように振幅 A を決定する。実測したパルスとモデルパルスの差を、

$$\chi^2 \equiv \int \frac{|D(f) - A \times M(f)|^2}{|N(f)|^2} df \quad (2.58)$$

と定義する。この χ^2 を最小にする A は

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(f)M(f)^* + D(f)^*M(f)}{2|N(f)|^2} df}{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{|M(f)|^2}{|N(f)|^2} df} \quad (2.59)$$

で与えられる。ここで $D(f), M(f)$ は実関数のフーリエ成分であるから、 $D(-f) = D(f)^*, M(-f) = M(f)^*$ を満たす。したがって、

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(f)M(f)^*}{|N(f)|^2} df = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(-f)M(-f)^*}{|N(f)|^2} df = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{M(f)D(f)^*}{|N(f)|^2} df \quad (2.60)$$

が成り立つので、 A は

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \frac{D(f)}{M(f)} \left| \frac{M(f)}{N(f)} \right|^2 df}{\int_{-\infty}^{\infty} \left| \frac{M(f)}{N(f)} \right|^2 df} \quad (2.61)$$

と表せる。式 (2.61) より、 A は $[M(f)/N(f)]^2$ を重みとした時の $D(f)/M(f)$ の平均値となっていることから、さらに、

$$A = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} D(f) \mathcal{F}^{-1} \left(\frac{M(f)}{|N(f)|^2} \right) df}{\int_{-\infty}^{\infty} \left| \frac{M(f)}{N(f)} \right|^2 df} \quad (2.62)$$

と変形できる。ここで \mathcal{F}^{-1} は逆フーリエ変換を表す。以上の方法で求めた \mathcal{F}^{-1} を最適化フィルタのテンプレートとし、これと実測データ間での相関を計算することを最適化フィルタ処理と呼ぶ。

最適化フィルタは回路系のノイズによる分解能の悪化が無視できないときに用いられる。したがって、回路系のノイズによる影響がエネルギー分解能に対して無視できる程小さければこの処理を行う必要はないと言える。XC ガス比例計数管では、回路系に入力される電子数が多いことから、相対的に読み出し雑音は小さくなり無視できる。

一方、半導体検出器のエネルギー分解能は、リーク電流や静電容量によって決まる読み出し電子回路系のノイズによって支配される。回路の動作温度を T 、入力等価雑音抵抗を R_{eq} 、周波数帯域幅を Δf 、半導体の静電容量を C 、電子の電荷容量を e とする。読み出し雑音 σ_R は、

$$\sigma_R = \frac{C}{e} \sqrt{4kTR_{eq}\Delta f} \quad (2.63)$$

で与えられる。一般的な半導体検出器の静電容量は数 10pF であり、読み出しノイズは無視できず、本来ならば最適化フィルタ処理を行う必要がある。式 (2.63) より、空乏層の厚さを厚くすれば静電容量が小さくなるので、読み出し雑音を減少させる事ができるが、厚い空乏層をもつ半導体検出器 (リチウムドリフト型半導体検出器) は液体窒素などで常時冷却し続けなければならないといった欠点がある。

2.8 世界の開発状況

2.8.1 開発の歴史

1941 年、Andrews は 3.2 K の超伝導遷移端中のタンタル細線を流れる電流を利用し、温度変化による抵抗の変化から赤外線を検出した。これは TES を利用した史上初のボロメータである。また彼は 1949 年に 15 K の遷移端中にある窒化ニオブのストリップを流れる電流を利用し、アルファ粒子の崩壊に伴う電圧パルスを計測することに成功した。これも史上初となる TES 型カロリメータの検出実証である。

だが上記の発明から半世紀の間、TES 型検出器の応用はあまり行われてこなかった。開発を阻む顕著な障害となったのは、FET アンプに対して TES のノイズをマッチングさせることが難しい点である (TES の典型的な常伝導状態の抵抗は数 Ω か、それ以下である)。近年では低抵抗な TES 型検出器に対して、容易にインピーダンスマッチングが取りやすい超伝導量子干渉計 (SQUID: Superconducting Quantum Interference Device) を用いた電流増幅によって、この問題は解決された。SQUID 系による電流読み出しと電圧バイアスの動作制御を導入したことで、過去十年の間に TES 型検出器は飛躍的な進歩を遂げた。TES カロリメータは、多素子サブミリ観測器として天文観測に応用されている。X 線分光器としては、提案段階であり、まだ観測は行われていない。MIT が中心となって計画されているロケット実験 *Micro-X* が最初の観測となる可能性が高い。

2.8.2 世界の開発状況

TES カロリメータの開発は、世界最高性能を出し続けているアメリカの NIST をはじめ、様々な機関で行われている。

NASA/GSFC では、TES である超伝導金属に Mo、常伝導金属に Au を使用した二層薄膜の構造を採用している。多くのミッションへ向けた素子開発をしており、中でも太陽フレアからの X 線ジェット観測に向けた TES カロリメータで $\Delta E_{\text{FWHM}}=1.6 \text{ eV}@5.9 \text{ keV}$ という世界最高性能を達成している。デザインは 32×32 ピクセルのアレイ素子で、 $35 \mu\text{m}$ 角の TES の上に Au のマッシュルーム吸収体が $4.5 \mu\text{m}$ の厚さで形成されている。図 2.9 に最高性能を出した素子の写真を示す。また図 2.10 が 5.9 keV の X 線を照射した際のエネルギースペクトルである。

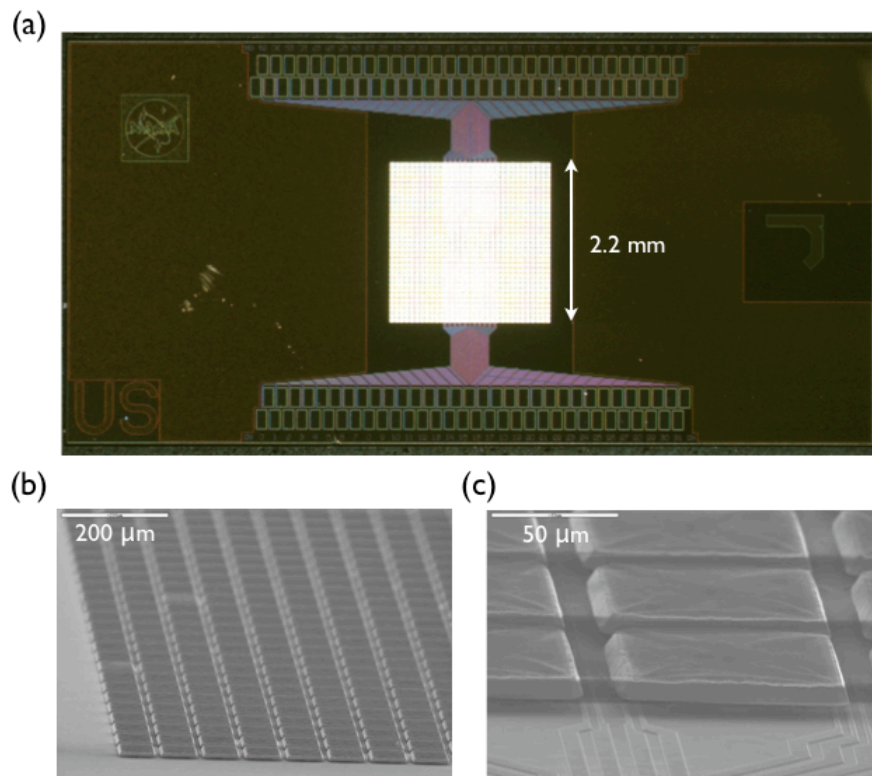


図 2.9: 世界最高のエネルギー分解能を持つ GSFC/NASA の TES カロリメータ。(a) 32×32 ピクセルアレイの全体像。(b) TES カロリメータの SEM イメージ。(c) SEM 観察の拡大イメージ。

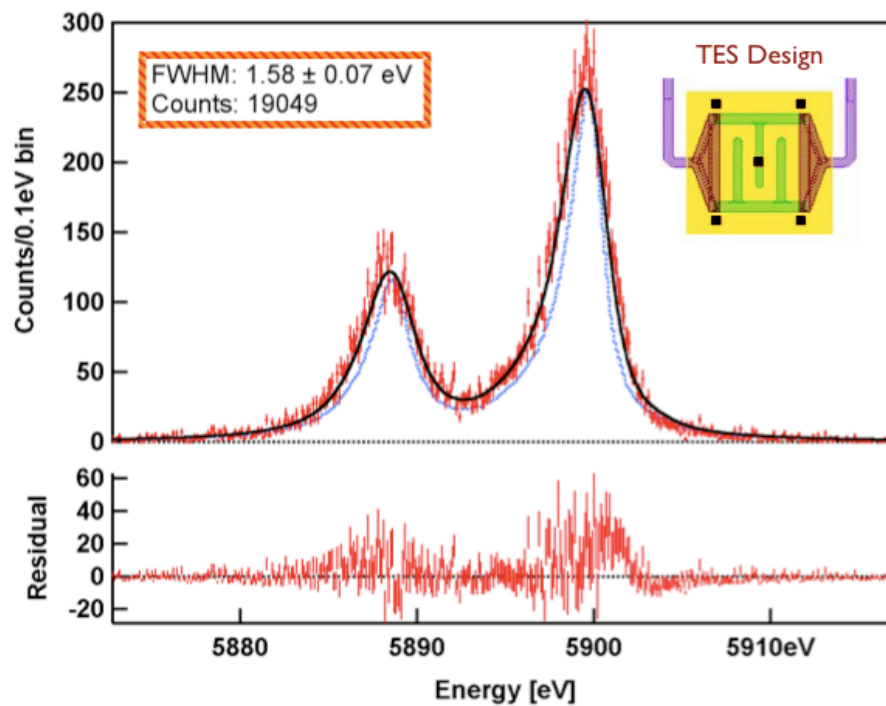


図 2.10: GSFC/NASA の TES カロリメータに X 線を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

エネルギー分解能の追求のみならず、アレイ化の研究も行われている。アメリカの NIST(National Institute of Standards and Technology) では Athena 衛星に向けた 3840 ピクセルの大型アレイを開発している。図 2.11 はその概略図である。全体を上から見ると 6 角形の構造を持っており、図 2.12 のように各素子が配置されている。また、多素子化が進むにつれて多チャンネルの読み出し系の必要性が高まり、オランダの SRON を中心に周波数分割方式 FDM(Frequency Division Multiplexing) による読み出し系の開発が進められている。FDM とは複数の素子をそれぞれ異なる周波数で駆動させることで信号を多重化する技術であり、SQUID の GHz という広い帯域と非常に相性が良い。他にも TES カロリメータの主な読み出し形式としてピクセルごとに読み出すタイミングをずらす TDM(Time Division Multiplexing) や、信号のパターンで分割する CDM(Code Division Multiplexing) などがある (図 2.13)。

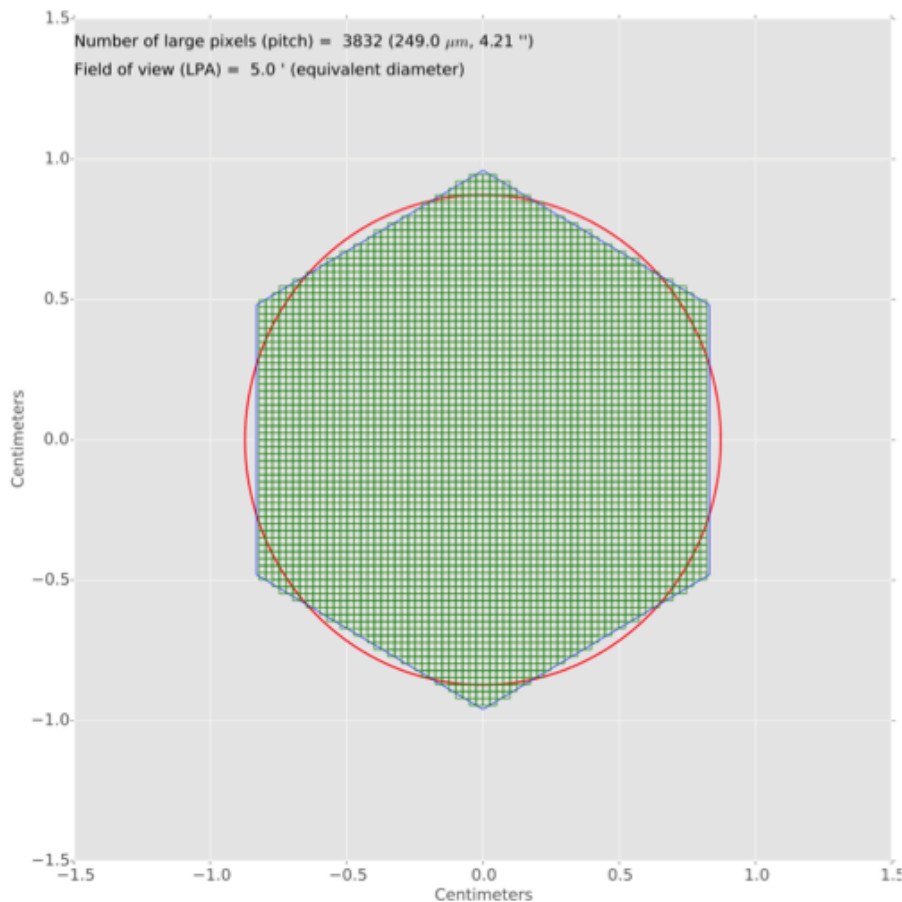


図 2.11: Athena に搭載予定の TES カロリメータアレイのデザイン [17]。

このように他機関においても TES カロリメータの開発は活発である。高性能な単素子の基礎開発はもちろんのこと、多素子化へ向けた開発を日本でも行われてきた。次章では日本のこれまでの開発状況と製作方法などを詳しく説明する。

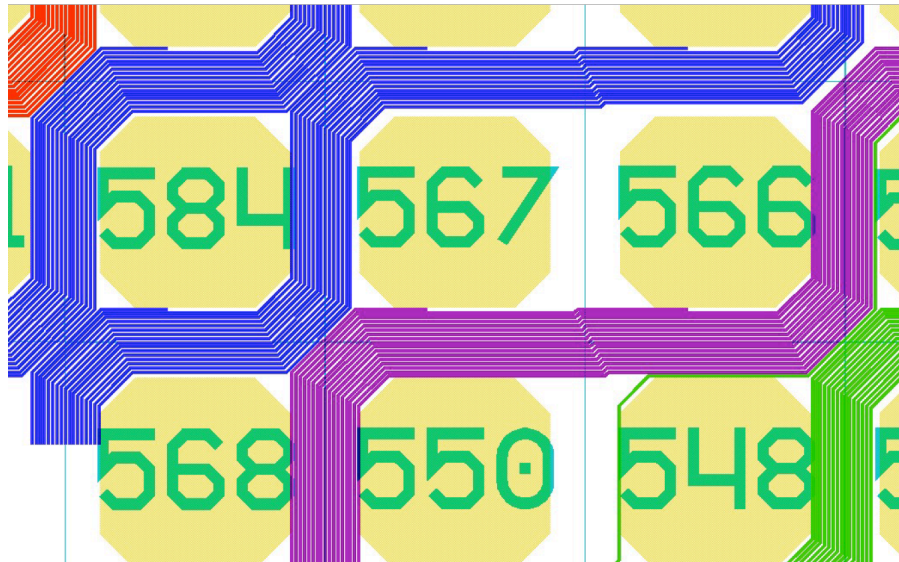


図 2.12: TES アレイの拡大図 [17]。

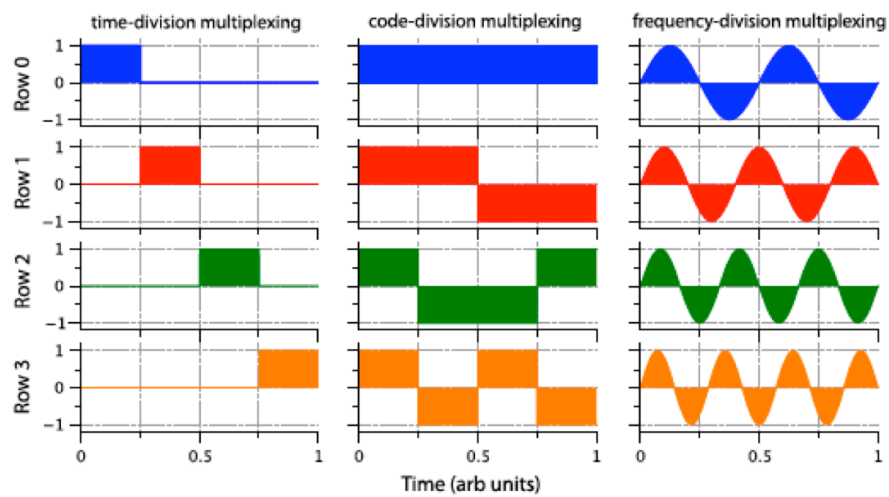


図 2.13: 信号多重化の概要（左: TDM、中央: CDM、右: FDM） [19]。

第3章 これまでの開発状況

我々は2006年からTESカロリメータ素子の製作、測定を全てグループ内(主に首都大学東京(以下、首都大)、宇宙科学研究本部(以下、宇宙研))の2機関で行える環境を整えている。この章ではこれまでに製作し評価してきたTESの単素子、多素子、 4×4 , 20×20 積層配線素子、傾斜付き積層配線素子の開発結果を述べる。なお、単素子・多素子用の配線基板、 4×4 , 20×20 積層配線基板の配線形成はセイコーインスツル株式会社(以下、SII社)及びエスアイアイ・ナノテクノロジー社(以下、SII NT社)に依頼していた。2013年以降の傾斜付き積層配線構造の製作については産業技術総合研究所(以下、産総研)に依頼している。

3.1 単素子の開発

TESカロリメータ素子の基礎研究として、まず 4×4 の16ピクセル素子を製作し、単素子の性能評価をおこなってきた。TES温度計には超伝導金属(Ti)と常伝導金属(Au)の二層薄膜を採用している。前章で述べたように、他機関では超伝導金属にMo、常伝導金属にはCuを使用するなどTESに用いる金属はさまざまである。次小節ではTESに使用している金属の選定について述べる。

3.1.1 TESに用いる金属の選定

TESカロリメータは ~ 100 mKという極低温下で能力を発揮する検出器である。温度計に超伝導金属を用いることでこれを満たすことが可能である。合金や化合物の超伝導体でも転移特性を急峻にすることは可能だが、現実的には α の高い超伝導転移特性を得るための手段として、単体の超伝導体を用いたほうがよい。これは合金や化合物では分散や結晶構造の不均一によって超伝導転移がなだらかになり、2段階以上の転移や α の低下を引き起こしやすいからである。また、1 K以下で超伝導転移を起こすような材料も単体金属に多い。

上記の理由から、TESの材料としてTiを選択した。Tiは非常に酸化しやすい金属であるため、Auを保護層としてTi上に形成する二層薄膜にしている。バルクTiの超伝導転移温度 T_c は390 mKであり、要求される ~ 100 mKよりも高いが、薄膜の T_c がバルクの T_c と異なる場合があることはよく知られている。これは薄膜がコヒーレンス長や磁界侵入長を無視できない厚さになったとき、電子間引力相互作用の変化によって T_c が変動するためである。このような効果は一般に「薄膜効果」と呼ばれている。また、超伝導薄膜と常伝導薄膜を積層すると、クーパ対が常伝導体に入り込むため、両者の膜厚比に依存して転移温度が下がる「近接効果」と呼ばれる現象がある。この2つの効果を用いることで T_c をコントロールすることが可能になる。また変質しやすい金属であっても、その上に安定な金属を常伝導層を重ねることにより、超伝導層の保護膜としての効果を得ること可能である。保護膜はTESの経時劣化を防ぐだけでなく、プロセス中にTESが受けるダメージを防ぐ効果もある。

3.1.2 製作素子の最高性能

これまでに首都大で製作した $200\text{ }\mu\text{m}$ 角のTESカロリメータ素子(TMU146-4d)では、5.9keVのX線に対して $\Delta E_{\text{FWHM}}=2.8$ eVという最高性能を達成している。これは世界最高性能であるNASA/GSFC

の $\Delta E_{\text{FWHM}}=1.6$ eV に迫る高いエネルギー分解能である。以下に最高性能素子とエネルギースペクトルを示す (図 3.1)。200 μm 角の TES(Ti/Au) の上に 120 μm 角の Au の吸収体がのっている。

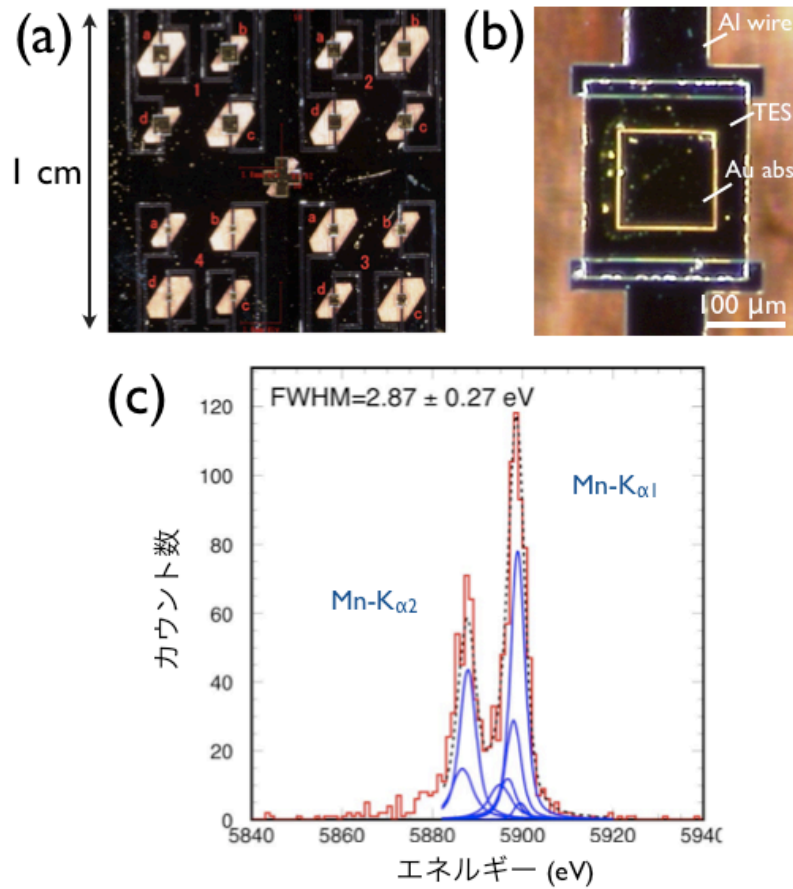


図 3.1: 首都大製最高性能素子 (TMU146-4d)。(a)16 ピクセル全体、(b)1 ピクセルの拡大写真、(c)Mn-K α を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

t

3.2 多素子の開発

衛星搭載を目的とし、16 \times 16 の 256 ピクセルアレイ素子も開発もおこなってきた。こちらは三菱重工業株式会社 (MHI: Mitsubishi Heavy Industries) と共同で開発を進め、構造は 200 μm 角の TES(Ti/Au) のみで吸収体はのっていない。

3.2.1 製作素子の最高性能

256 ピクセル素子に 5.9keV の X 線を照射し、 $\Delta E_{\text{FWHM}}=4.4$ eV の分解能を得ている。以下に最高性能素子とエネルギースペクトルを示す (図 3.2)。

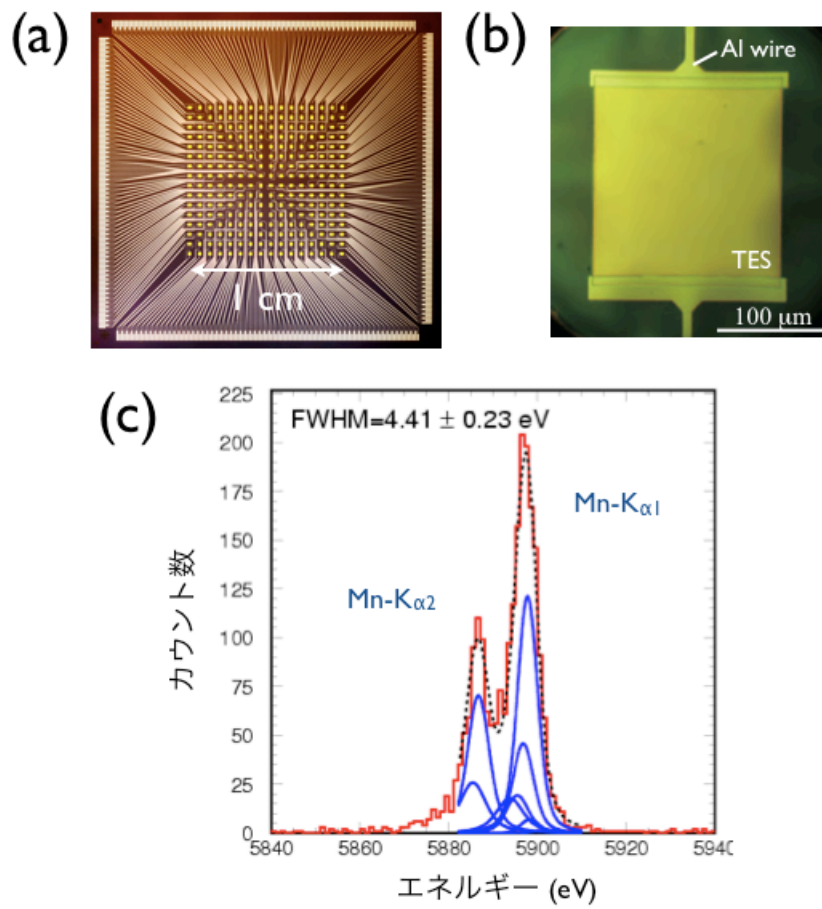


図 3.2: MHI 素子。(a) 基板全体図、(b)1 ピクセルの拡大写真、(c)Mn-K α を照射した際に得られたエネルギースペクトル。

3.3 積層配線素子の開発

これまで製作した素子は TES の両端から配線が伸びる構造 (以下、単層配線構造) をしている (図 3.3)。我々の目指す有効面積 1 cm^2 及び単ピクセルでのエネルギー分解能 $< 5\text{ eV}$ を満たす為には、熱容量との兼ね合いから $200\text{ }\mu\text{m}$ 角のピクセルによる 20×20 アレイが必要となる。しかし、単層配線ではピクセルをより密集させようとする以下のような問題が発生してしまう。

1. 配線スペース

単層配線では 16×16 の 256 ピクセルアレイが限界である。これよりもピクセルを増やしてしまうと配線幅を細くせざるをえなくなり、配線も更に密集するため製作面でも困難となる。また、配線の表面形状による影響が顕在化することで完全に超伝導転移することができず、残留抵抗が高くなってしまう可能性がある。

2. 配線間クロストークの発生

配線数が増えることにより配線間隔が狭くなり、配線電流やピクセルから発生した磁場が他配線や他ピクセルに誘導起電力を起こし、余計な電流を発生させてしまう (クロストーク)。

3. 配線のループによる自己インダクタンスの影響

単層配線はコイルのようなループ構造をしている。よって配線電流が変化した際に、磁場の変化を打ち消すような逆起電力を生み出してしまう。

これらの問題を解決するために、我々は積層配線構造を採用した。ここで積層配線構造とは、ピクセルまでのホットトリターン配線を絶縁膜を挟み上下に重ね、コンタクトホール部分で接続したものである。図 3.4 に積層配線デザイン図を示す。上下に重なった構造により、配線スペースの削減につながる他、ホットトリターンを流れる電流がお互いの磁場を打ち消す効果がある。

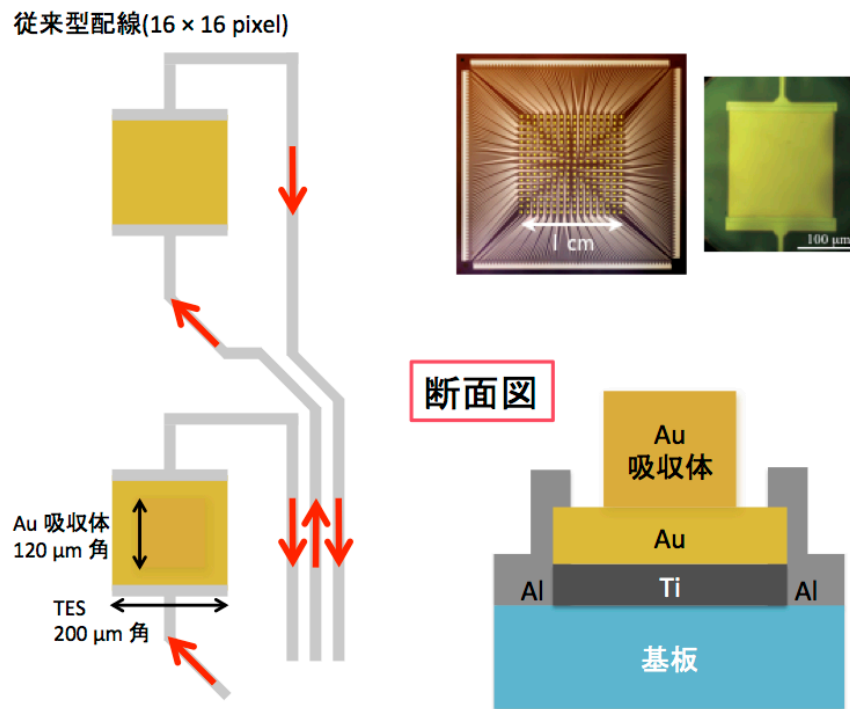


図 3.3: 従来の 16×16 アレイデザイン。

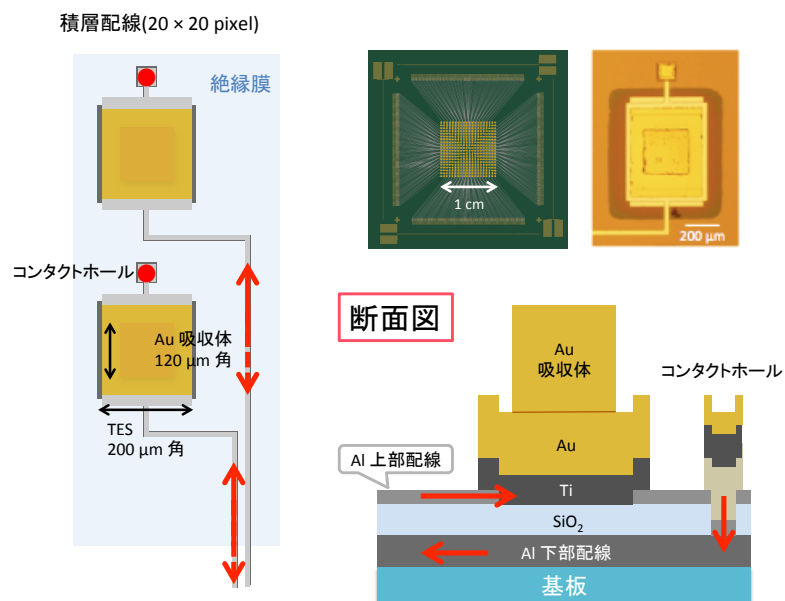


図 3.4: 積層配線 20 × 20 アレイデザイン。

3.3.1 製作素子の性能

最終的には 20×20 アレイを目標としているが、製作プロセス確立のためまずは 4×4 アレイの試作を行った。

4×4 ピクセルアレイ素子 TMU 284 では、歩留まりは 94%、常伝導抵抗は $\sim 153 \text{ m}\Omega$ 、残留抵抗は $0.28 \text{ m}\Omega$ と我々の目標値を満たしていた。しかし臨界電流が $30 \text{ }\mu\text{A}$ とやや低かった他、転移温度が $\sim 260 \text{ mK}$ と要求値に対し高くなってしまった。これは TES と上部配線間の段切れを防ぐために TES の膜厚をチタン 100 nm 、金 200 nm と上部配線よりも厚くせざるを得なかったためである。また、TMU 284 の X 線照射試験を行い積層配線素子で初の X 線信号を検出したが、エネルギー分解能は $\sim 100 \text{ eV}$ と高かった。これは TES の膜厚を厚くしたために高くなった転移温度とピクセルの熱容量が効いてきているものと考えられる。

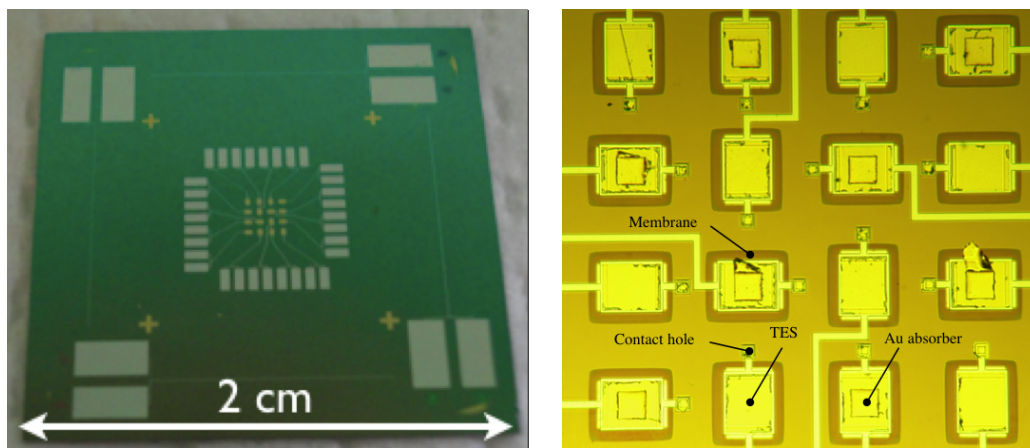


図 3.5: TMU 284 の完成後の光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル部分。

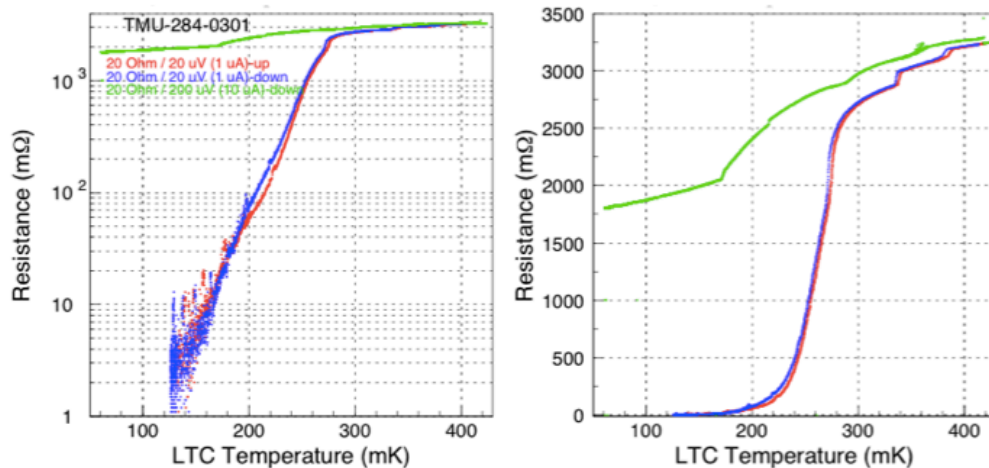


図 3.6: TMU 284 pixel ID:0301 の R-T 測定の結果。左: 対数スケール、右: 線形スケール。

また、 4×4 ピクセルアレイで確立した積層配線素子の製作プロセスを、 20×20 ピクセルアレイに適用し製作及び評価を行った。製作した 20×20 ピクセルアレイの TMU 293 は、TMU 284 の結果を受け

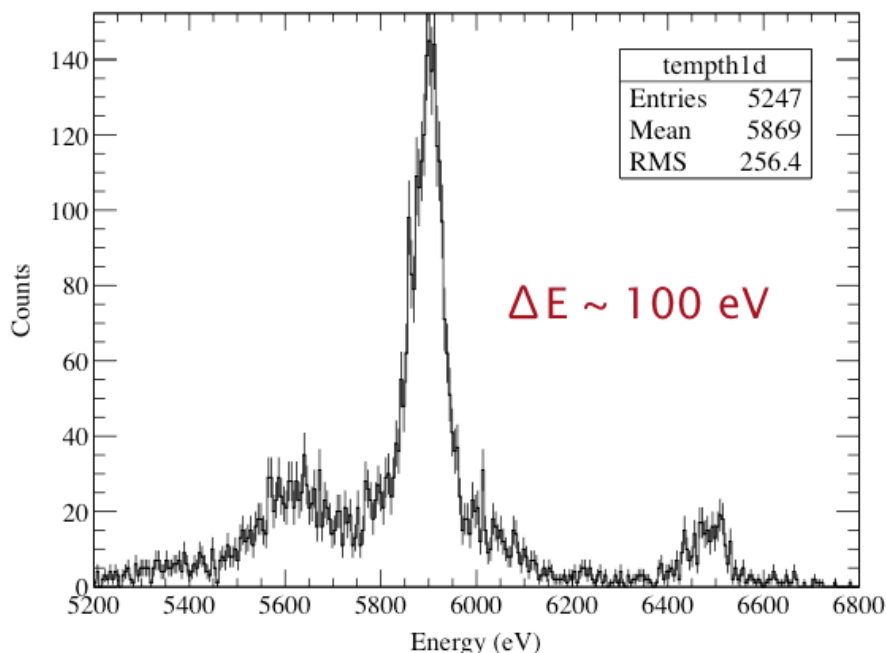


図 3.7: TMU 284 で得た 5.9 keV の鉄 55 線源に対する X 線信号。

TES の膜厚はチタン 100 nm、金 250 nm と膜厚比を高くしたが転移温度は 245 mK と依然高いままであった。また、常伝導抵抗は 9 Ω、残留抵抗も 20 mΩ と高く、X 線信号は検出できなかった。歩留まりが 60% という低さも問題であり原因を探るために SEM 及び FIB にて観察を行ったところ、上部配線の傷による断線や上部配線 - TES 間のコンタクトが不十分であるということがわかった。

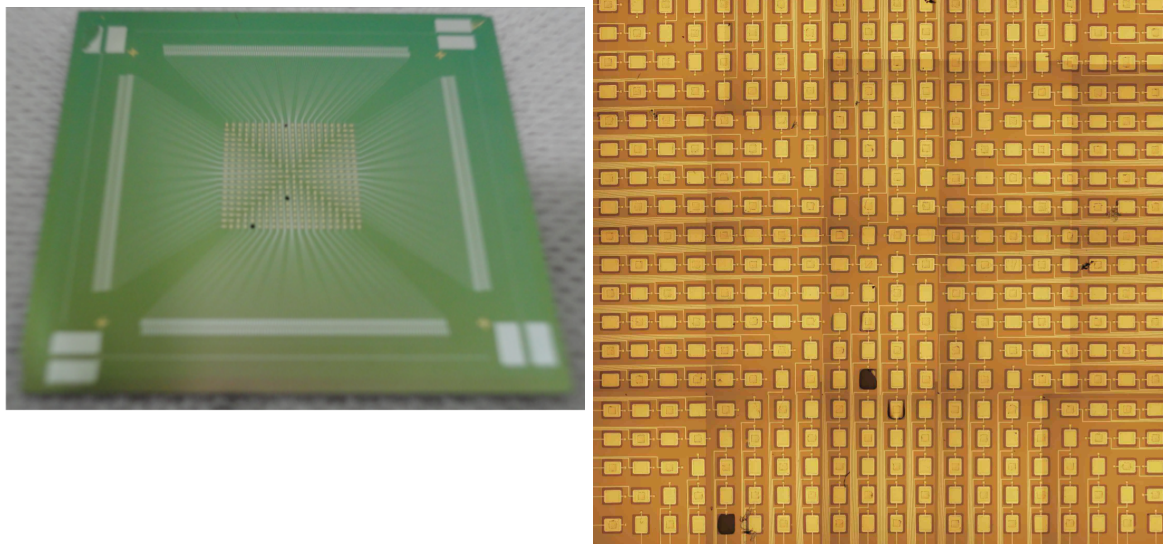


図 3.8: TMU 293 の完成後光学顕微鏡写真。左: 全体像、右: ピクセル部分。

3.4 傾斜付き上部配線素子

積層配線を用いた TES 型マイクロカロリメータ製作にあたり、TES の膜厚を薄くし転移温度を下げることで、上部配線 - TES 間のコンタクトの改善、配線の傷耐性の向上が必要になる。これらの問題を

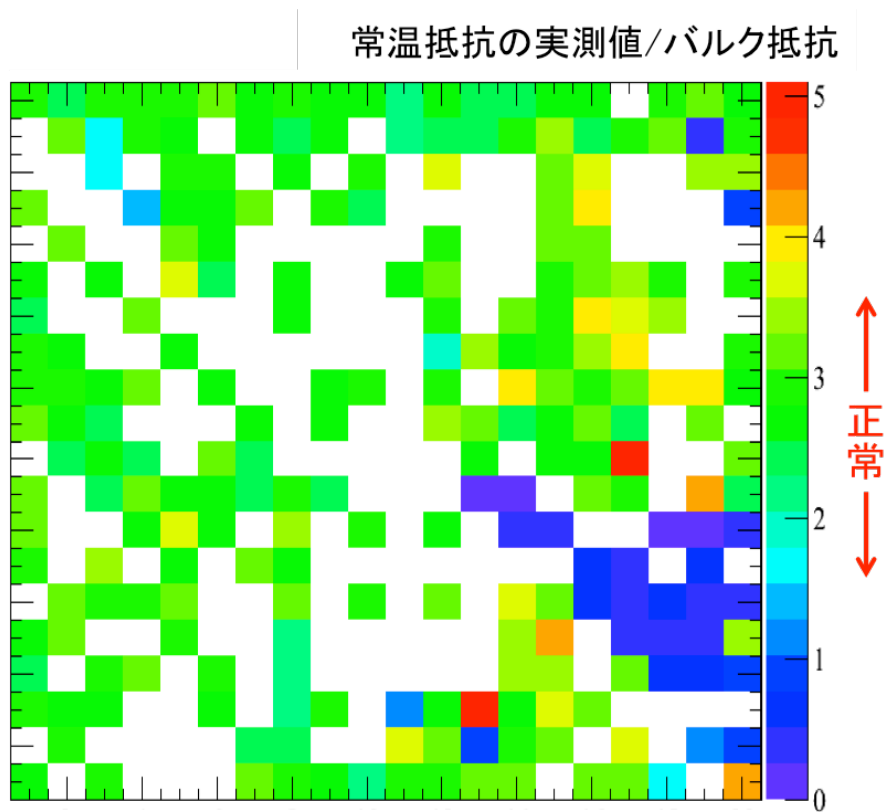


図 3.9: TMU 293 完成後の上部配線パッド - 下部配線パッド間の室温抵抗の実測値マップ。白く抜けているマスは導通していなかったピクセル。

解決するため傾斜付き配線素子の製作を行なった。積層配線素子の上部配線を形成する際に配線側面に傾斜(テーパ)をつけ、TES とのコンタクトを良くすることで問題の改善を図った。傾斜を付けることで期待される効果として、TES を最適膜厚まで薄くすることで転移温度を最適化すること、コンタクトが良くなり常伝導抵抗及び残留抵抗が改善されること、配線を厚くすることが可能となり傷耐性が高くなることが挙げられる。傾斜を形成するにはイオンミリング法を用いる。イオンミリング法とは、イオンビームを試料に照射し試料原子をはじき飛ばすスパッタリング現象を利用して試料を削る方法である。配線用にパターンニングしたレジストに熱を加え液ダレさせた(リフロー)上で、イオンビーム軸に対し角度をつけ回転させることで傾斜のついた配線ができる。イオンミリングについては次章で改めて説明する。図??は傾斜付き上部配線の概略図と、実際に試作した素子の断面の様子である。上部配線に傾斜をつけたことで TES 膜の Ti と Au が段切れを起こすことなく滑らかにコンタクトできている様子がわかる。

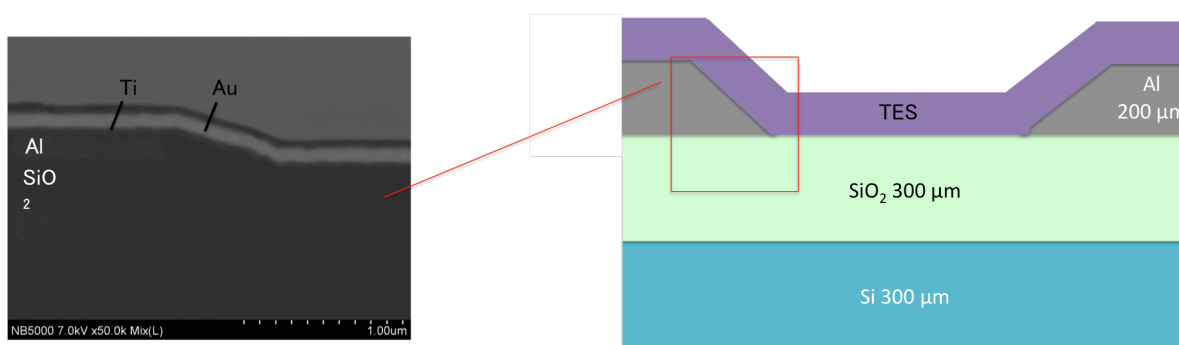


図 3.10: 傾斜付き上部配線概略図(右)と FIB-SEM による断面観察結果(左)。

3.4.1 製作素子の性能

TMU 349 では上部配線イオンミリング時に 45° の角度で回転させて上部配線のパターンニングを行なった。十分なエネルギー分解能を得るためには転移温度 $T_c \sim 100$ mK が理想だが、首都大の希釈冷凍機の最低到達温度が 100 mK 程度であることから余裕を持って 150 ~ 160 mK 程度の転移を目指す。そのため、TMU 349 は過去の条件出しから転移温度 150 ~ 160 mK 程度と予想される膜厚 $\text{Ti}/\text{Au} = 40/90$ nm でスパッタした。パターンニング後に R-T 測定を行ったところ、 ~ 170 mK で転移を確認できた。常伝導抵抗は ~ 840 m Ω と大きくなり、転移もダラダラしたものとなったが、残留抵抗は ~ 1 m Ω と小さく、積層配線基板を製作する上で傾斜付き上部配線が有効であることがわかった。

3.5 傾斜つき積層配線素子

傾斜付き上部配線素子の試作素子において良好な R-T 結果が得られたことを受けて、傾斜付き上部配線に加え下部配線のパターンニングも施した、傾斜つき積層配線素子の試作を行った。それまで製作した積層配線素子・傾斜付き上部配線素子のノウハウを活かして傾斜つき積層配線素子を製作することで、TES 型マイクロカロリメータとして基本的な動作を確認し積層配線素子での製作・測定プロセスを確立することが目的である。

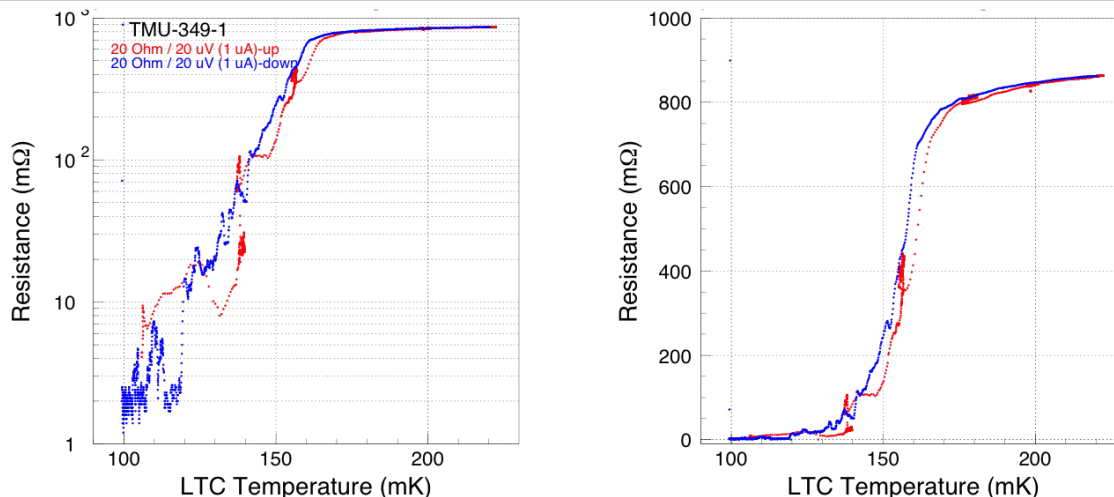


図 3.11: TMU 349 pixel ID: 1120 の R-T 測定結果。左はリニア、右はログスケール。

3.5.1 試作プロセス

以前の試作までは配線パターンニングは宇宙研や SII で行っていたが、2013 年度からは産総研に依頼している。イオンミリング法による上部配線パターンニングまでのプロセスは産総研で行われ、基板を 3.5 cm 角にダイシングカットし首都大に配送、スパッタリング法による TES 薄膜成膜以降の製作プロセスを首都大、宇宙研で行った (§5 参照)。

また、2014 年度時点では配線にアルミを採用し、下部配線は 100 nm、上部配線は 200 nm で統一していた。四隅のピクセルは TES パターンが無く、上部配線間が繋がっている導通確認用ピクセルとした。使用する 3 inch シリコンウェハはシリコン厚み 300 μm 、そこに厚み 300 nm の酸化膜と 400 nm の窒化膜を両面成膜した基板を使用した。なお、2015 年度からは 3 inch シリコンウェハの厚みを 380 μm に増やしている。これは従来の 300 μm がパターンニングの際に用いるステッパーの規格の基板厚み 380 μm 以上 800 μm 未満から外れているために、アライメントの精度が低下する懸念があったためである。厚みを変えることでメンブレン形成用のドライエッチングのレシピを変更する必要はあるものの、基本的なプロセスおよび素子の性能には影響が小さいと考え、380 μm に変更することにした。

5 章にて詳しく記述するが、TES は首都大のスパッタ装置にてチタンと金の二層薄膜を基板表面全体に成膜する。これまでの条件出しから、Ti/Au=40/80 nm という膜厚が転移温度や常伝導抵抗の大きさから見て最適な膜厚であると考えられたため、傾斜付き積層配線の試作では原則チタンの膜厚は 40 nm に固定し、金の膜厚を 70~110 nm の間で調整している。

3.5.2 製作素子の性能

TMU 394(wafer 07)

窒化膜酸化膜付きシリコンウェハに配線構造を製作した基板で、配線は上部配線・下部配線ともに Al、TES の膜厚は Ti/Au = 40/70 である。図??は完成後の TMU394 素子とピクセル外の配線部分の写真であるが、一部配線にダメージが確認できる。R-T 測定をした結果、冷凍機の最低到達温度 92 mK で常伝導抵抗は $\sim 400 \text{ m}\Omega$ となった。 $\sim 1.2 \text{ K}$ での Al 配線の転移は確認できたが、TES の超伝導転移は確認できなかった。

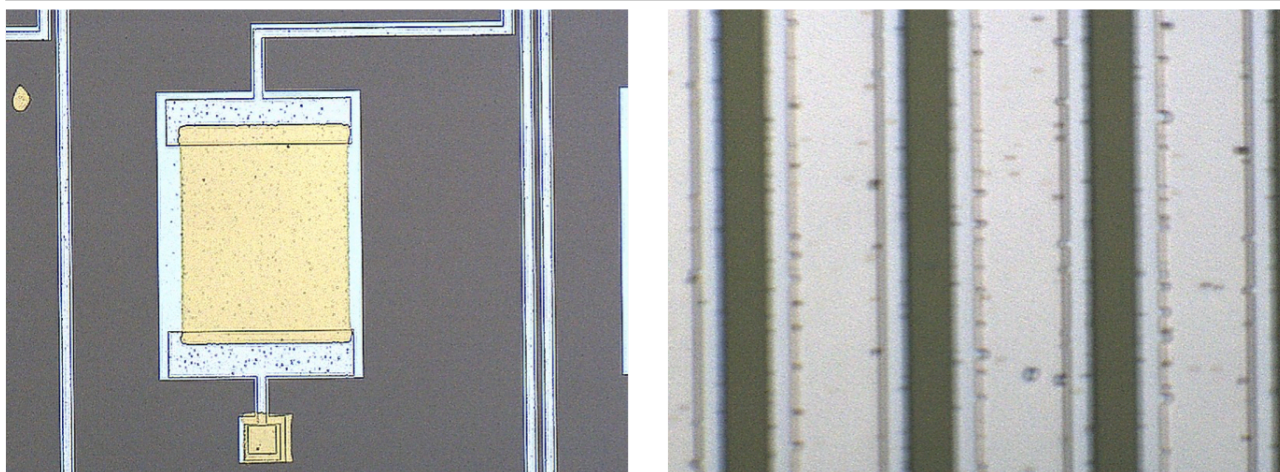


図 3.12: TMU 394(wafer 07) 素子 (左) および配線 (右)。

3.5.3 原子間力顕微鏡 (AFM) 観察

上記の通り、両面窒化膜酸化膜つき基板において、傾斜つき積層配線素子の超伝導転移は確認することができなかった。TES 素子自体の導通がとれていること、常伝導抵抗の値も数百 Ω と正常であることから、我々は TES 膜そのものに注目して問題の原因を突き止める必要があると考えた。そこで、宇宙科学研究所の原子間力顕微鏡 AFM (Atomic Force Microscope) を用いて TES 表面の形状観察を行うこととした。

TMU394(wafer 07)

TMU 394 (TES パターニング後) の TES 膜上を AFM で測定し、表面の形状を調べた。測定したのは中央付近の 1 ピクセル。測定スケールは 1 μm 角である。

測定の結果、RMS = 4.5 nm の表面荒さを持ち、なおかつ TES 表面に最大で ~ 30 nm の凹凸が存在していることがわかった。これは、Ti の膜厚である 40 nm と同程度の大きさである。TES 表面にこれほど大きな凹凸が存在するということはこれまで認識していなかったため、制作工程のどの段階で荒さが生じているかについて調べることにした。

Wafer 13

TMU 394 の AFM 結果を受け、TES の成膜プロセスを施す前の基板である wafer 13 についても AFM 測定を行った。測定箇所は中心付近のピクセル部分で、最終的に TES の下地となる酸化膜表面である (図??)。結果、RMS = 5.3 nm、最大高低差 ~ 32 nm と、TMU 394 と同等の大きさの表面荒さが基板の段階段階ですでに存在していることがわかった。同様に計 4 カ所計測したが、全てこれと同等の値か、より大きな荒さが見られた。

TMU394 の結果と合わせると、TES を成膜する前の基板の段階ですでに顕著な表面の荒れが生じていることがわかった。この凹凸が全体にあるとすると TES の膜質および転移に悪影響を及ぼすことは大いに考えられる。

【参考】AFM の荒さ表記

表面粗さに関するパラメータには ISO 25178 と JIS B 0601-2001 (ISO13565-1) という 2 種類の規格がある。ISO25178 は三次元的な面の表面粗さに関するパラメータで、走査範囲全体の二乗平均平方根

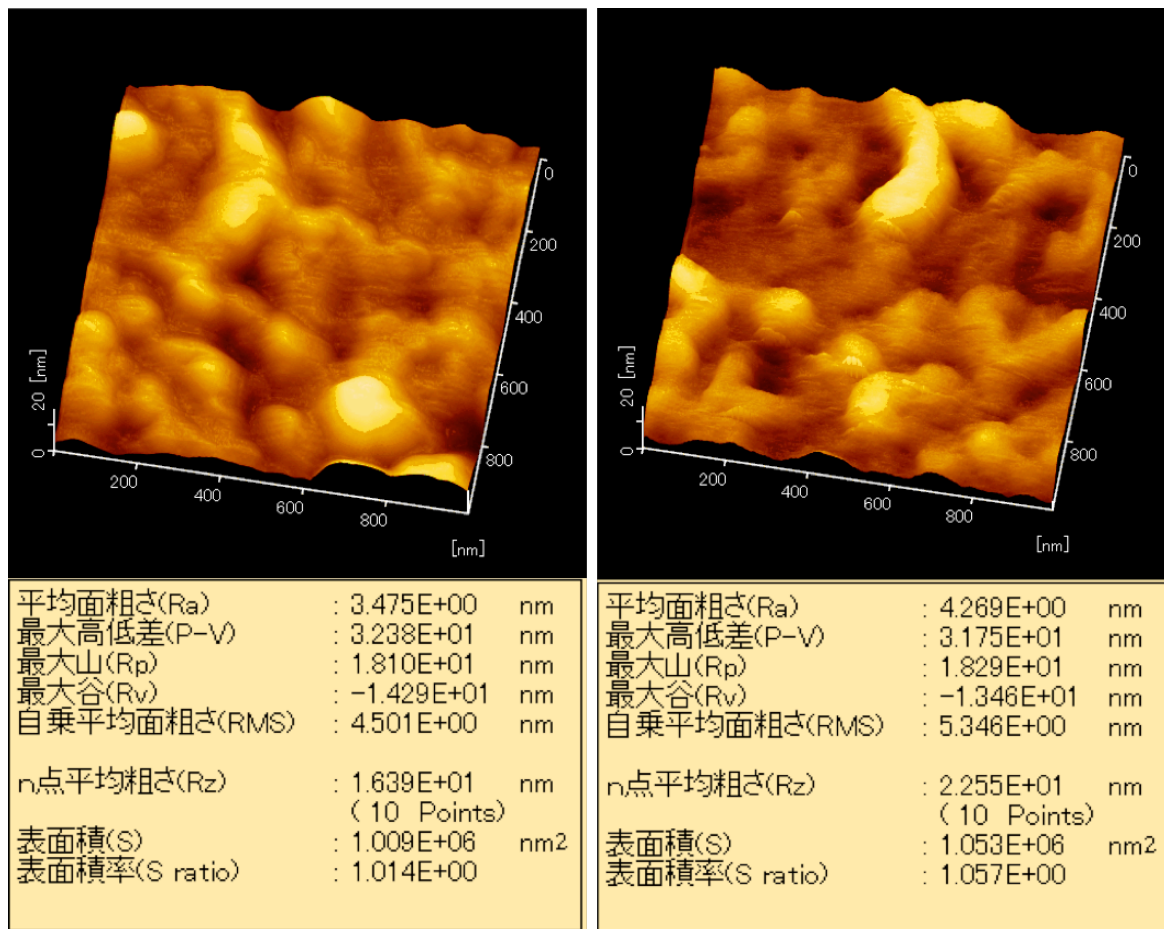


図 3.13: TMU 394(wafer 07) 中央付近 の TES 上の AFM 結果。

図 3.14: Wafer 13 の中央付近 TES 下地の AFM。

高さである S_q を表面荒さとして出力する。一方 JIS B 0601-2001 は二次元的な直線の高さの粗さに関するパラメータであり、走査範囲内から選択した直線上の二乗平均平方根高さ R_q を RMS という名称で表示している。 R_q は走査方向や直線の位置によって値が変化してしまうが、小さな山の高さを測ったり、エラーが出力された箇所を回避して解析する事が出来る。

3.5.4 表面荒さの改善

AFM による観察から、基板に深刻な表面荒さが存在することがわかった。そこで我々は基板の表面の荒さを改善すべく、以下の 2 点について変更を行った。

Nb 配線の採用

これまで配線の素材をアルミニウムに採用していた理由は、ニオブよりも粒径が小さいのでデポジット後の表面の粗さもより良いものになると予想したからである。しかし、デポジット後の表面粗さよりもエッチング後の粗さを重視するべきだとわかった以上、これを見直す必要がある。

産総研ではアルミのエッチングにはイオンミリング法を用いているが、ニオブのエッチングには SF_6 ガスを用いた RIE 法を用いている。 SF_6 ガスは SiO_2 と反応しにくいいため、ニオブに比べて絶縁膜のエッチングレートは著しく低くなり、絶縁膜をオーバーエッチングしても表面が荒れにくい。また、産総研におけるスパッタリング精度においても、Al より Nb の方がすぐれていることがわかった。これらの理由から、以降は配線素材に Nb を使用して基板の製作を行うこととした。

イオンミリング+RIE による上部配線加工

配線素材を Nb に変更した上で、積層配線基板の製作プロセスを各段階で AFM による表面荒さの測定を行いながら進めたところ、上部配線に傾斜を付けるイオンミリングによって荒さが大きくなっていることがわかった。イオンミリングによる加工を施す前の TES 下地酸化膜の表面荒さは $S_q = 0.5 \sim 0.7 \text{ nm}$ なのに対し、イオンミリング後に再び露出した酸化膜の表面荒さは $S_q = 6.2 \text{ nm}$ にも達した (図??)(図??)。

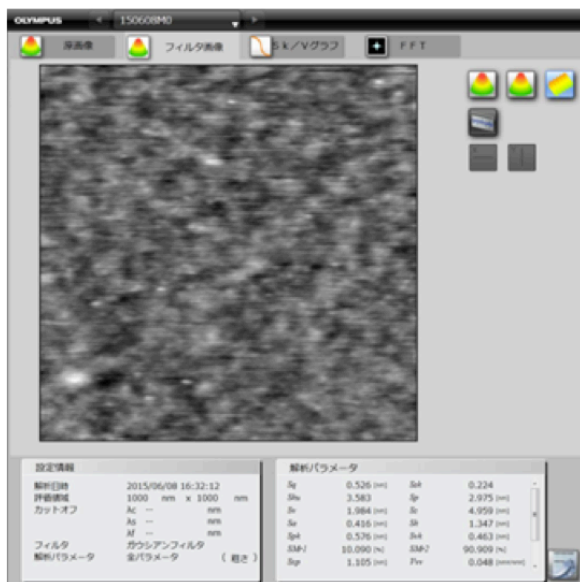


図 3.15: イオンミリング前の酸化膜表面。

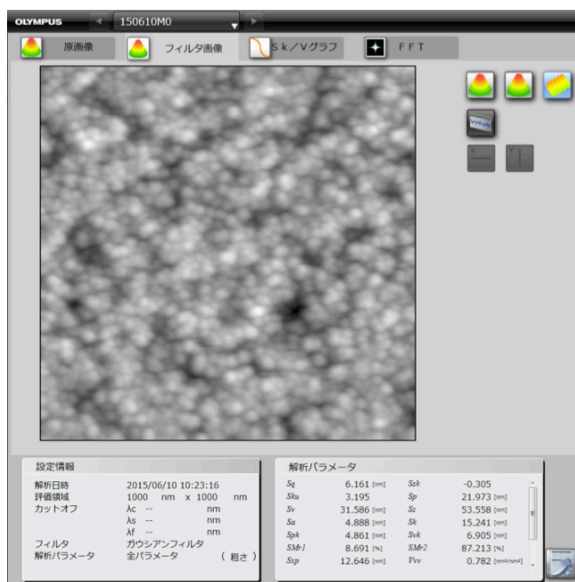


図 3.16: イオンミリング後の酸化膜表面。

そこで、傾斜を付けるためのイオンミリングを上部配線のエッチングが完全に終了する直前でストップさせ、最終的な表面のエッチングを RIE で垂直方向に行うプロセスを採用することにした (図 3.17)。これによって、上部配線の傾斜は維持したまま、表面を荒さらず配線をエッチングすることが可能になると考えた。

この方法を用いて作成された基板が wafer 20 である。TES 下地の酸化膜表面荒さを測定したところ $\text{RMS} = 1.5 \text{ nm}$ であり、イオンミリングのみで上部配線の加工をした基板と比べて、数倍改善することができた。

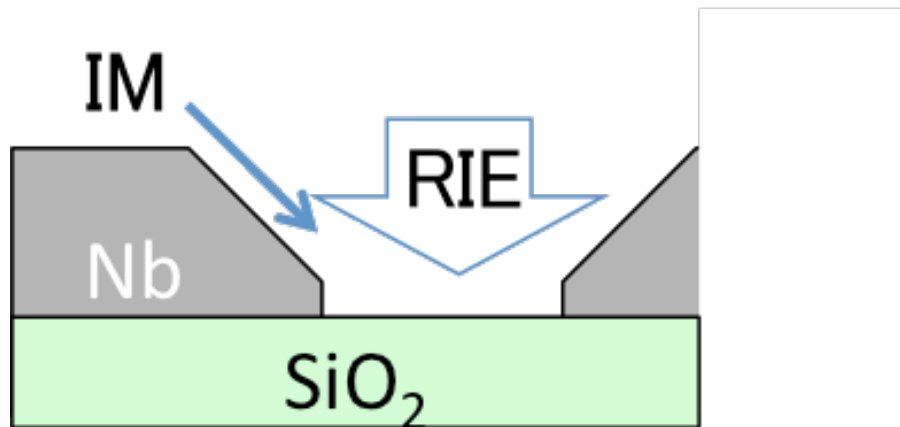


図 3.17: イオンミリングと RIE を組み合わせた上部配線加工の概略図。

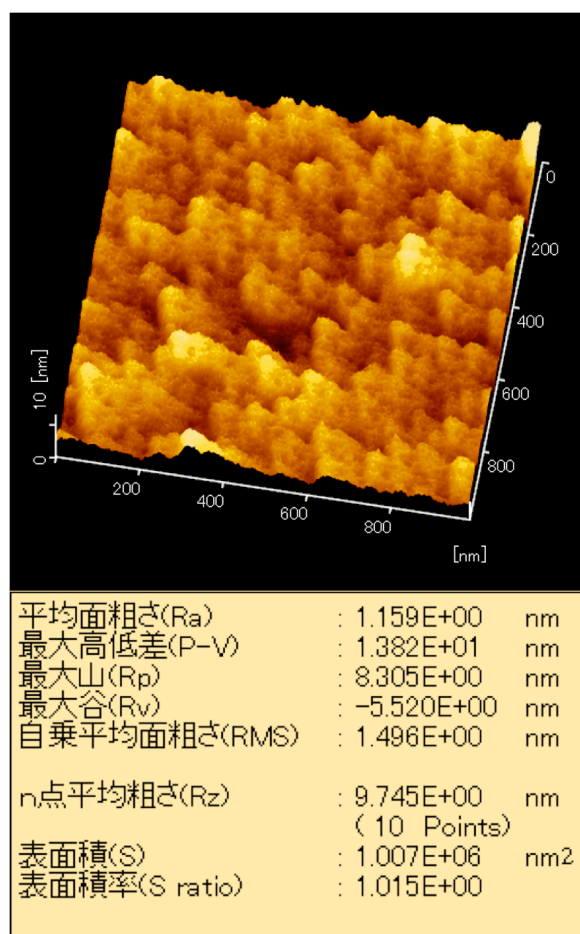


図 3.18: wafer20 の TES 下地酸化膜 AFM。

3.5.5 製作素子の性能

配線素材に Nb を使用し、かつ上部配線の加工にイオンミリング+RIE を使用し製作した基板 wafer 20 を首都大にて TES を Ti/Au=50/100 nm スパッタした TMU443 を製作した。これは、過去の条件出しにおけるデータが最も多い膜厚比 Ti/Au=2 であり、かつチタンを少し厚めに設定するためである。転移温度は 120~270 mK 程度を予想していた。

希釈冷凍機に組み込み、112 mK まで冷やしたが転移は確認できなかった。ピクセル上のニオブにワイヤボンディングしたものを 3 チャンネル、配線外の部分を 2 チャンネル測定した。ピクセル上では 20 mΩ、配線外では 220~250 mΩ の抵抗値のままアルミワイヤの転移点 ~1.2 K まで変化しなかった。

3.6 化学機械研磨 (CMP) を用いた積層配線素子

傾斜付き上部配線素子では、上部配線にテーパを形成することで、TES と配線のコンタクトがなめらかになるようにしてきた。しかし、テーパを形成する際に用いるイオンミリングと呼ばれる、イオンビームを利用した配線のエッチング方法を取る場合に TES 膜の下地である SiO₂ 層に数十 nm の凹凸が発生していることがわかった。前述のとおり、同じく数十 nm の膜厚の金属から構成される TES に対する荒さとしては明らかに大きく、TES の各種特性に影響を与える可能性は十分高いと考えられた。そこで、化学機械研磨と呼ばれる手法で表面全体を研磨することで表面の荒さをさらに抑えるのに加え、露出した上部配線および酸化膜を全て同じレベルになるようなデザインに変更した。これにより、TES 膜の一様性をあげ、上部配線と TES のコンタクトをより安定的に確保することができると考えた (図??)(図 3.21)。CMP の加工プロセスは株式会社 D-process 外注した。

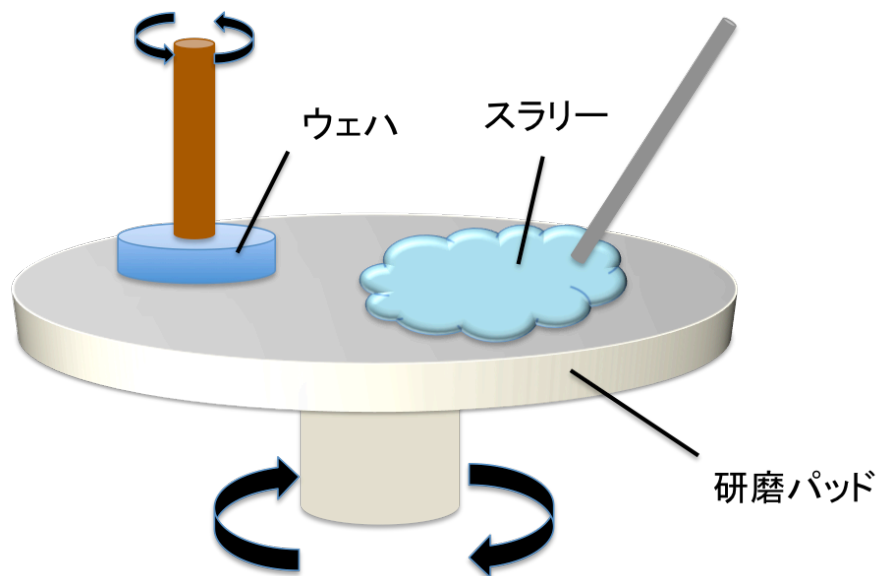


図 3.19: CMP 概略図

3.6.1 新デザイン

CMP を用いる新デザインでは、配線レイヤーの製作プロセスの完了後に CMP による研磨プロセスを必要とする。CMP で表面の平坦性および各構造の間の段差を小さくするためには上部配線と酸化膜を削りしるとして従来より十分厚く成膜する必要がある。

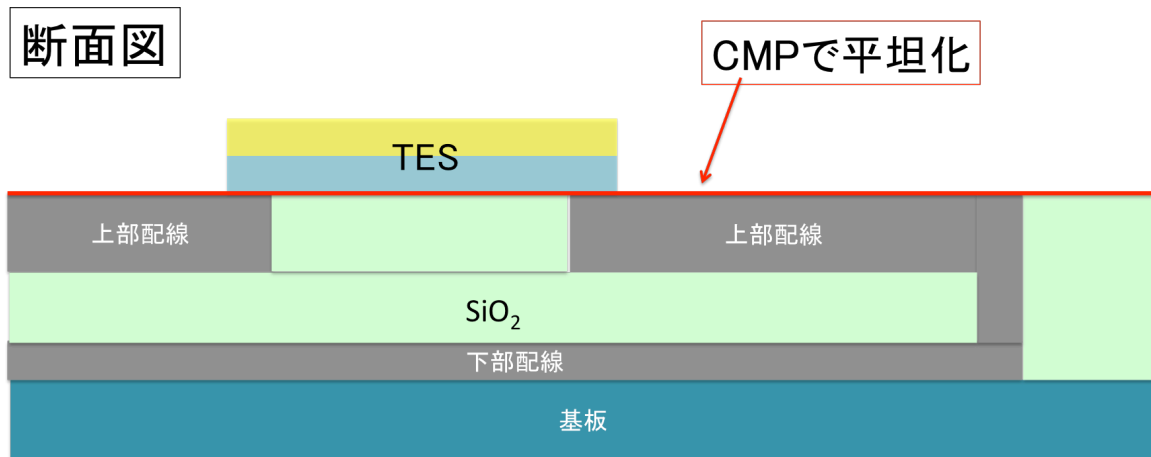


図 3.20: CMP 素子断面概略図。

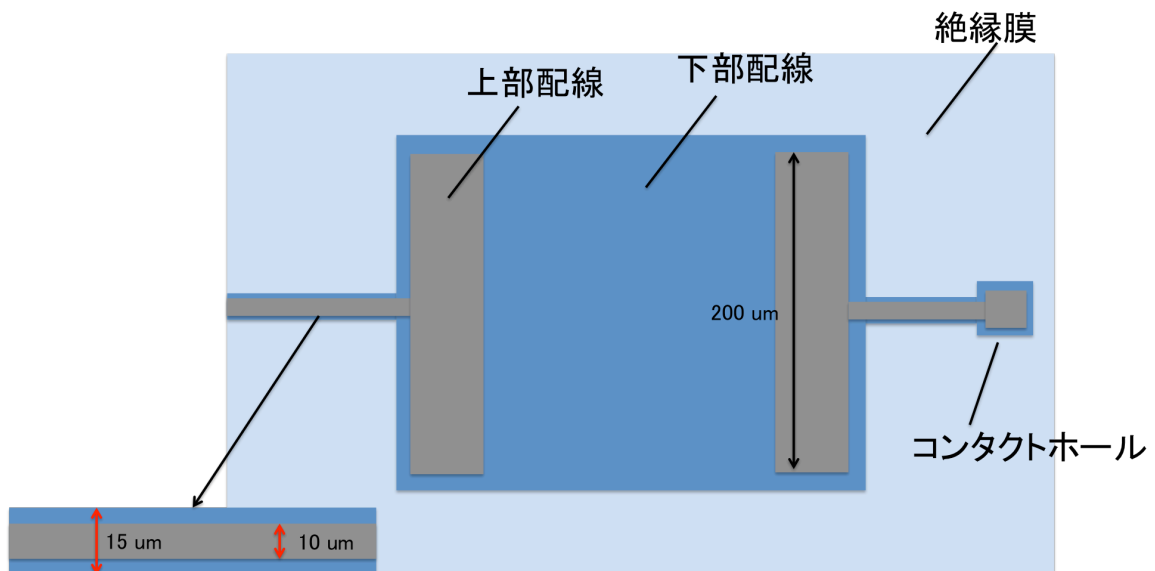


図 3.21: CMP 素子上面図概略図。

1. 上部配線の形成

CMP 加工では、従来 200 nm であった上部配線の厚みを 500 nm まで増やす必要がある。スパッタリング装置はこれまでと同じものを使用、スパッタ時間を 129 sec(200 nm) から 337 sec(500 nm) へ増やし成膜を行う。その後これまでと同様の方法でレジストフォトリソを行うが、上部配線の厚み増加に伴う長時間の RIE に備え、レジストは 1 μm と、下部配線形成時より厚めにつける。なお、新デザインではテーパーをつける必要がないので、レジストリフローを行う必要は無い。フォトリソグラフィ終了後、RIE を 220 sec 行う。今回もアッシングとウェットクリーニングを両方行い、上部配線のパターニングが終了する。

2. 絶縁膜の成膜

CMP を利用した新デザインでは、ピクセルの上部配線間を酸化膜で埋めることにより基板表面全体を同じレベルにし、その上から形成する TES 膜の段切れやコンタクト不良を防ぐ。そのため上部配線形成後に改めて TEOS-SiO₂ 膜を全体に成膜することになる。CMP を外注する D-process との協議により、削りしろを含め SiO₂ は 800nm の厚みで成膜することになった (図 3.22)。方法としては、下部配線と上部配線の間の絶縁膜を形成した際と同様であるが、使用した装置の傾向として基板の左右で成膜レートに微妙な差が存在していた。そこで、極力膜厚の一様性を保つ工夫として 400 nm 成膜後に一度基板を取り出し、180 度回転させて残りの 400nm を成膜する方法をとっている。

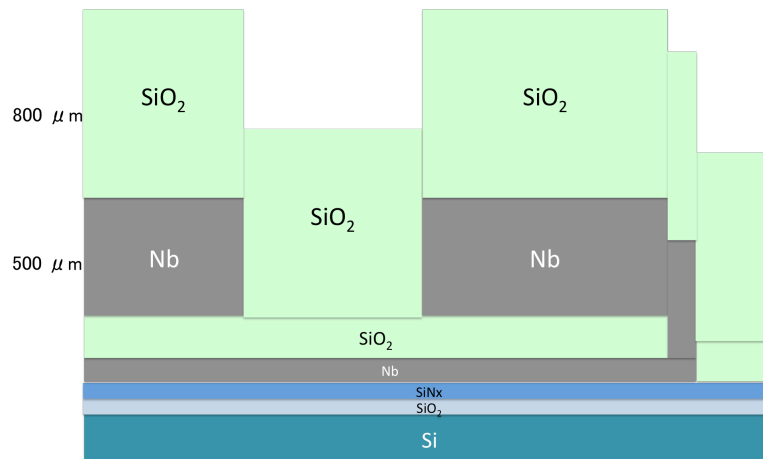


図 3.22: 上部配線と絶縁膜を成膜した積層配線基板。

3. CMP による段差解消と表面粗さ改善

最終的な工程として、株式会社 D-process に基板を送り、CMP によるピクセル部分の上部配線と間の酸化膜の段差の解消、および TES 膜下地の表面粗さの改善を行う (図 3.23)。図 3.24 は加工前の表面粗さと加工後の表面粗さを比較したものである加工前の粗さが ~ 1.2 nm rms なのに対し、加工後は ~ 0.38 nm rms と大幅に改善し、描画の見た目からも明らかに凹凸が減っている様子がわかる。また、CMP で上部配線間の酸化膜に「ディッシング」と呼ばれる凹みが生じてしまうが、図 3.25 のようになめらかな凹みとなるため、TES のコンタクトに及ぼす影響は少ないと考えられる。実際、CMP を用いた積層配線基板では、常温状態での導通確認で 400 ピクセル全てで導通が取れており、抵抗のばらつきも小さい事が確認されている。最後にダイシングソーを用いて 3 inch のウェハを 3.5 cm 角になるように切り出す。

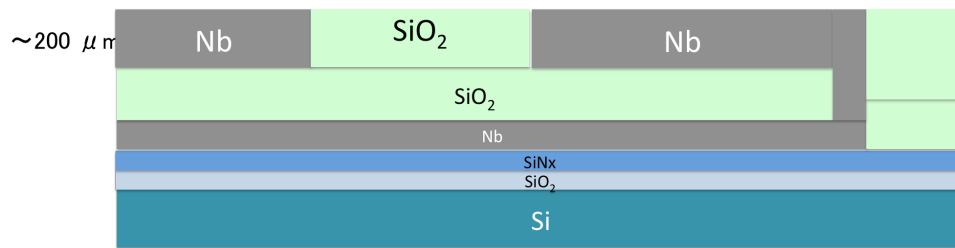
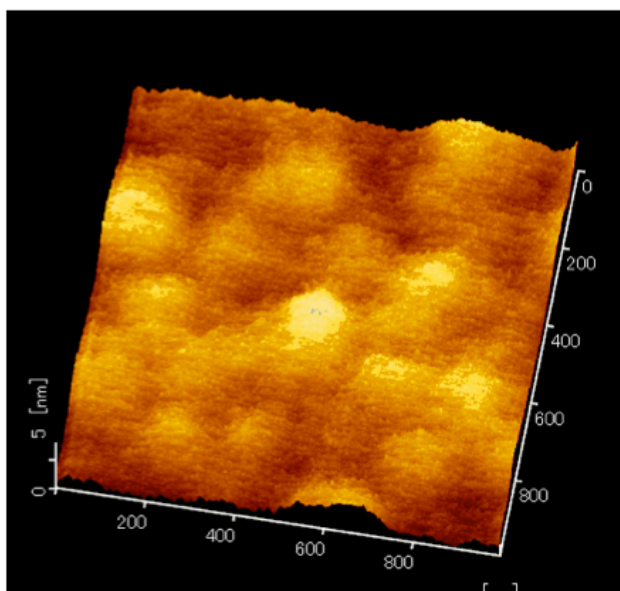
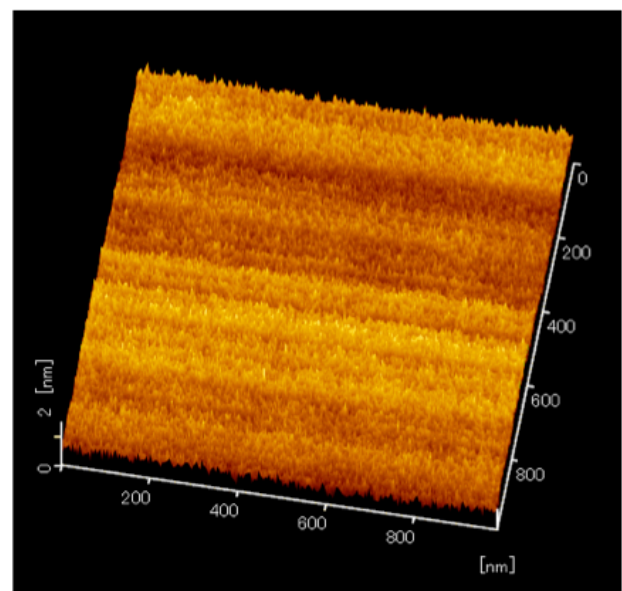


図 3.23: CMP で研磨した積層配線基板。



平均面粗さ(Ra)	: 8.959E-01	nm
最大高低差(P-V)	: 8.196E+00	nm
最大山(Rp)	: 4.475E+00	nm
最大谷(Rv)	: -3.722E+00	nm
自乗平均面粗さ(RMS)	: 1.119E+00	nm
n点平均粗さ(Rz)	: 5.707E+00	nm
	(10 Points)	
表面積(S)	: 1.041E+06	nm ²
表面積率(S ratio)	: 1.045E+00	



平均面粗さ(Ra)	: 3.029E-01	nm
最大高低差(P-V)	: 3.378E+00	nm
最大山(Rp)	: 1.492E+00	nm
最大谷(Rv)	: -1.886E+00	nm
自乗平均面粗さ(RMS)	: 3.793E-01	nm
n点平均粗さ(Rz)	: 2.511E+00	nm
	(10 Points)	
表面積(S)	: 1.001E+06	nm ²
表面積率(S ratio)	: 1.009E+00	

図 3.24: CMP 前の表面粗さ (左) と CMP 後の表面粗さ (右)。

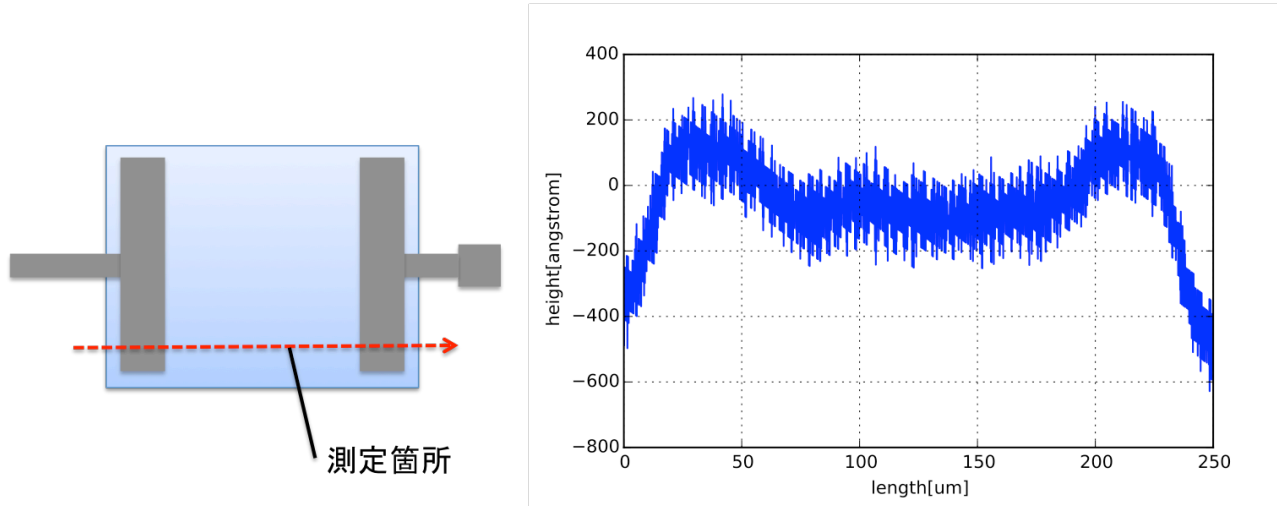


図 3.25: DEKTAK による高さプロファイル。

3.6.2 試作素子の超伝導転移

これまで最小でも ~ 1.5 nm rms と大きかった基板上の表面粗さを改善することができたため、TES カロリメータの製作へと進んだ。従来と同じプロセスで素子の製作が可能かどうかを調べ、出来上がった素子の性能が従来の傾斜付き積層配線素子と比較してどのような特性を持つかについて調べるため、試作素子 TMU444 を作成した。また、TMU444 の結果を受け、TES の超伝導転移の確認を優先する目的で Ti の膜厚を増やした TMU445 を製作した。

結果、これまでと同様のプロセスで TES のピクセル加工を行えることがわかった。また、FIB-SEM による断面観察で TES と上部配線が滑らかにコンタクトしている様子を確認することができた。しかし、試作素子の TMU444 および TMU445 では常伝導抵抗の値に問題はなかったものの、TES の超伝導転移を確認することができなかった。すなわち基板の表面粗さを抑えるだけでは TES の超伝導転移を確保することはできない可能性がある。どのような条件を満たせば TES の転移が見られるかについて検証する必要がある。

表 3.1: CMP 積層配線基板製作条件

TMU ID	使用基板	膜厚 (Ti/Au)	逆スパッタ条件	磁気シールド有無	TES の超伝導転移有無
443	傾斜付き積層	50/100	150W 3 min	無	無
444	CMP 基板	50/100	150 W 3 min	無	無
445	CMP 基板	60/20	150 W 3 min	1 回目:無 2 回目:有	無
477	CMP 基板	100/20	150 W 3 min	有	有
459	CMP 基板	100/20	100 W 1 min	有	有
474	CMP 基板	50/125	100 W 1 min	有	無

そこで、Ti を大幅に厚くすることで転移温度を最大限高くするとともに、Ti 膜の膜質の安定性を上げることがを試みた。Ti の膜厚を 100 nm として製作した積層配線素子が TMU477 である (図 3.27)。TES パターニング前にピクセル外の酸化膜上の TES を 1 箇所、パターニング後に中央付近、端付近のピクセルをそれぞれ 1 つずつ、計 2 箇所測定した。測定箇所と得られた抵抗の値を表 3.2 に、R-T 曲線を図 ??、図 ??、図 ?? に示す。

結果、パターニング前後でどちらも TES の超伝導転移が確認できた。転移温度はパターニング前で 240 mK、パターニング後で 250 mK と 10 mK ほど変化しているが、冷凍機内の温度計のモニター制度の不定性の範囲内だと考えられる。また、それぞれ常伝導抵抗が高めの値になっているのは Au 膜を薄

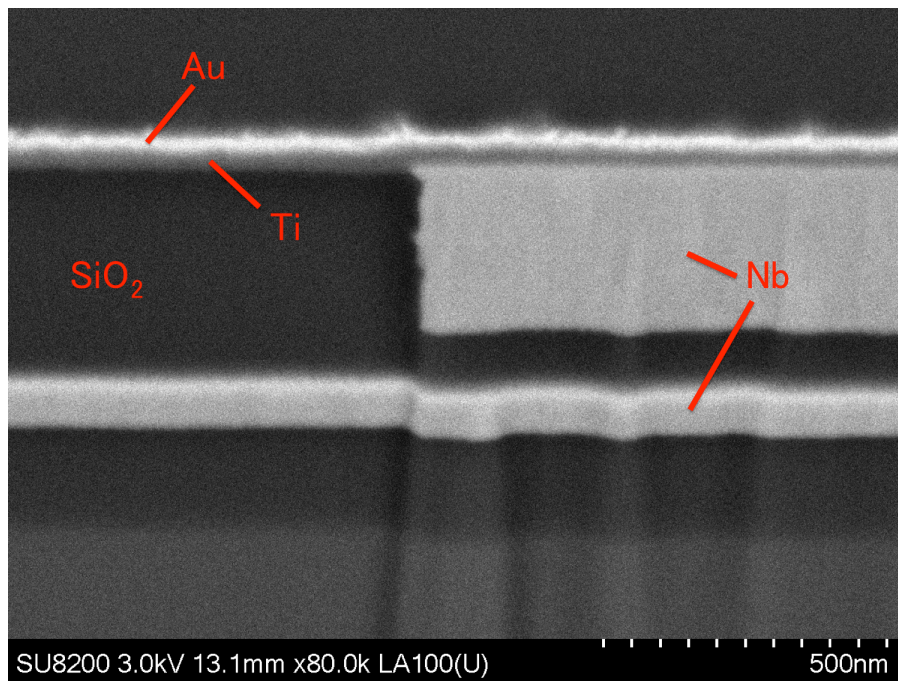


図 3.26: TUM445 の TES-上部配線コンタクト部分。

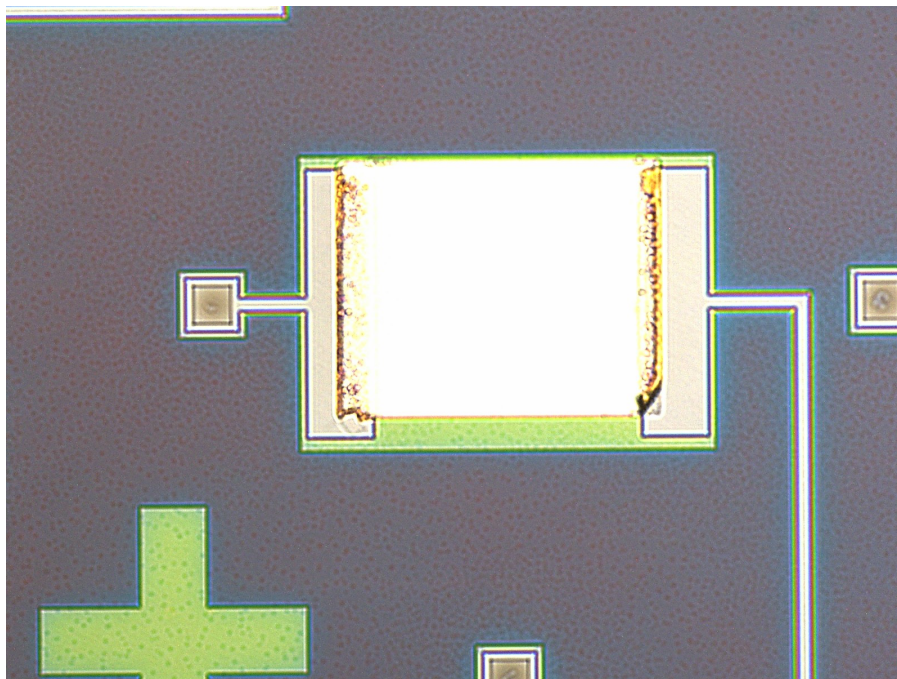


図 3.27: TMU477 中心ピクセル。

表 3.2: TMU477 R-T 結果まとめ。

	pixel ID	転移温度 [mK]	極低温での抵抗値 [mΩ]	常伝導抵抗 [mΩ]
パターニング加工前	ピクセル外	240	2.0	800
パターニング加工後	1110	250	1.7	813.0
	1901	250	1.7	807.9

くしたことが影響していると考えられる。

3.6.3 TES 成膜プロセス後の表面粗さ

TMU477 の転移温度が予想より低かったことから、CMP を用いることで基板表面の粗さは抑えられたものの、やはりある程度の粗さが生じてしまっていることが予想される。これまで我々は、基板段階での表面粗さに着目して改善を行ってきた。しかし、その後の TES 膜をスパッタするプロセスにおいて基板に対してクリーニングの目的で逆スパッタを行うが、逆スパッタはプラズマを基板そのものに当てるため、対象のエッチングが進む。そこで、逆スパッタを経ている TES パターニング後の基板表面についても表面粗さの測定を行うこととした。

TMU477 は逆スパッタの条件を 150 W×3 min で行った素子である。AFM による表面観察結果を図 (3.28) に示す。測定スケールは 1000×1000 nm である。

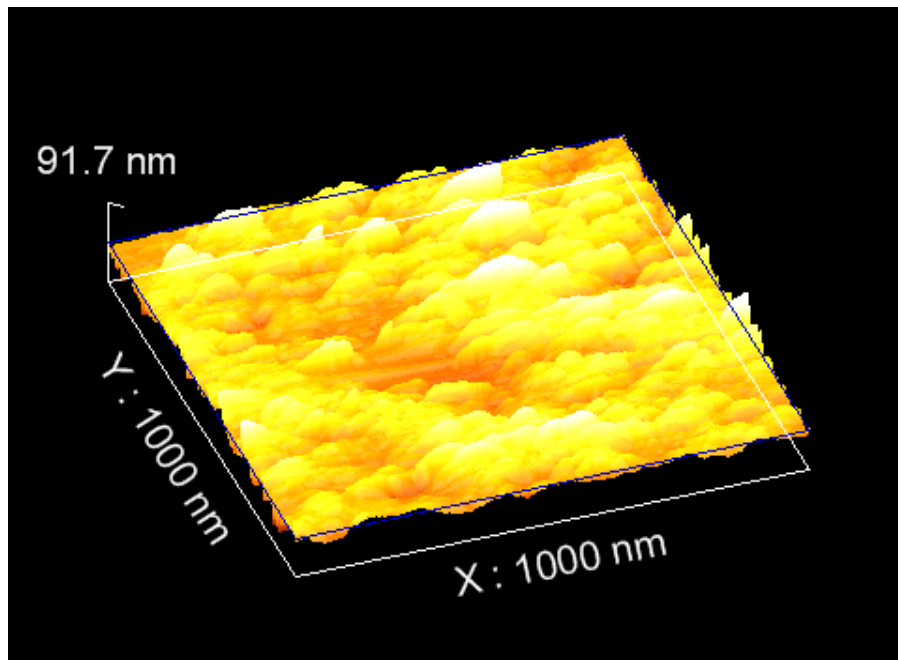


図 3.28: パターニング後の TMU477 表面酸化膜上 AFM 結果。

結果、 $S_q = 8.85$ nm、 $S_z = 91.7$ nm となっていた。ES のパターニング工程で物理的なエッチングは行っていないことから、この粗さは逆スパッタ時に生じたものであると考えた。この結果から 150 W×3 min で逆スパッタした基板では TES 成膜後に表面粗さが大きくなっていることがわかった。

3.6.4 CMP 積層配線基板の完成

TMU477 の結果を踏まえ Ti の膜厚を 100 nm、逆スパッタの条件を 100 W×1 min として製作した素子が TMU459 素子である。製作条件を表 (3.3) に示す。パターニングまで問題なく行えたため、この時

点で TES の超伝導転移特性を調べた。測定から得られた転移カーブを図 3.29 および図 3.30 に示す。また、転移した 2 つのピクセルについて臨界電流の測定も行った。結果は表 3.4 のようになった。どちらのピクセルも $1000\mu\text{A}$ の電流に耐えており、目標としている臨界電流 $100\mu\text{A}$ を余裕を持ってクリアする素子が作成できた (表 3.4)。

表 3.3: TMU459 製作条件

使用基板	基板名	CMP02
TES 成膜	上部 Nb 配線	t 300~400 nm, w 10 μm
	下部 Nb 配線	t 100 nm, w 15 μm
	予想膜厚	Ti/Au = 100/20 nm
	逆スパ準備室真空度	1.7×10^{-5} Pa
	逆スパッタ条件	100 W 1 min
	成膜室真空度	8.04×10^{-8} Pa
	Ti プレスパッタ	3 min
	Ar 圧 (Ti スパッタ)	0.150 Pa
	印加電圧 (Ti スパッタ)	393 V
	Au プレスパッタ	1 min
TES pixel 加工	Ar 圧 (Au スパッタ)	0.150 Pa
	印加電圧 (Au スパッタ)	501 V
	Au エッチャント	AURUM101 50 mL
	エッチング時間	10 s
	Ti エッチャント	H_2O_2
	エッチャント温度	60 $^{\circ}\text{C}$
	エッチング時間	3 hr

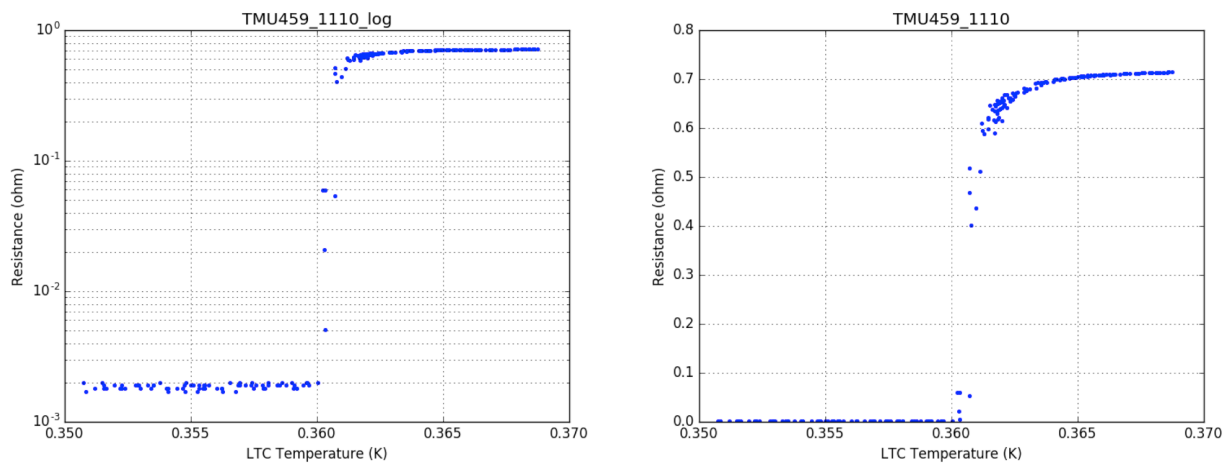


図 3.29: 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 1110)。左:対数スケール、右:線形スケール。

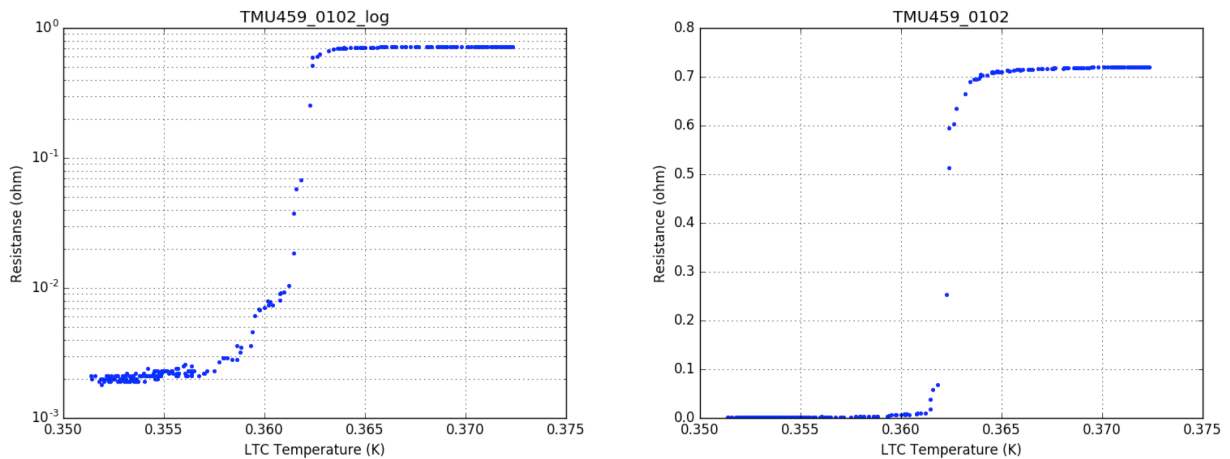


図 3.30: 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 0102)。左:対数スケール、右:線形スケール。

表 3.4: 臨界電流測定結果。

Pixel ID	臨界電流 [μA]
1110	> 1000
0102	> 1000

3.7 これまでの積層配線素子開発のまとめ

1. 4×4 ピクセル積層配線素子にてエネルギー分解能 100 eV を達成し、 20×20 積層配線基板の製作プロセスを確立した。
2. TES と上部配線のコンタクトを強化する目的で、新たに傾斜付き上部配線の製作プロセスを確立。試作基板にて TES の正常な転移を確認した。
3. 傾斜付き上部配線を採用した傾斜付き積層配線基板の製作プロセスを確立したが、TES の転移は確認できなかった。
4. 傾斜付き積層配線基板の TES 下地に ~ 5.3 nm rms の表面粗さが存在することがわかった。従来のイオンミリングと RIE を組み合わせた上部配線の加工に変えることで、粗さを ~ 1.5 nm rms まで改善する事ができたが、超伝導転移は確認できなかった。
5. さらなる表面粗さの改善のため、配線デザインとプロセスを変更し、CMP 加工を用いた基板の製作と TES 成膜時の逆スパッタ条件を調節したところ、表面粗さを ~ 0.645 nm rms まで抑えることができた。
6. CMP 積層配線基板を上 に TES の膜厚を $\text{Ti}/\text{Au} = 100/20$ nm、逆スパッタの条件を $100 \text{ W} \times 1 \text{ min}$ とした TMU459 を製作したところ、 $T_c \sim 360 \text{ mK}$ での超伝導転移が確認できた。

3.8 本修論の目的

我々は、WHIM の検出を目指した次世代衛星 DIOS への搭載に向けた積層配線 X 線マイクロカロリメータを開発している。これまでは、CMP 加工の導入や逆スパッタ条件の調整により、積層配線を用いた基板の超伝導転移が確認できた。それに伴い、測定環境の見直しや追加を行う必要が出てきた。また、TMU459 のプロセスを進め、X 線照射試験を行えるように準備しなければならない。

本修論では、測定環境の構築としてマイクロプローバーによる常温系での性能評価と、冷凍機による測定の改善として磁気シールドの導入実験について述べる。また TMU459 の加工として残っている吸収体製作とメンブレン加工のプロセス構築を目指す。

第4章 R-T 測定と性能評価の環境構築

4.1 無冷媒希釈冷凍機

カロリメータの性能を引き出すには、極低温で動作させることが必須であり、 ~ 100 mK 以下の冷凍能力をもつ冷凍機が必要である。この冷凍機として、希釈冷凍機を使用した。希釈冷凍機は、冷却能力が大きく、寒剤の液体 He (4.2 K) が無くならない限り極低温を保ち続けることが可能である。 ^3He - ^4He 希釈冷凍機の冷却は、液体 ^3He と液体 ^4He との混合希釈によってなされる。 ^3He - ^4He 混合液 (mixture) は、0.87 K 以下で超流動性を示さない ^3He 含量の多い ^3He -濃厚層 (concentrated phase) と超流動性を示す ^3He 含量の少ない ^3He -希薄層 (dilution phase) とに分離する。冷却は、 ^3He -濃厚相と ^3He -希薄相中の ^3He のエントロピーの違いを利用するもので、 ^3He -濃厚相から ^3He -希薄相へ ^3He が混入するときに吸熱がおこる。

使用した希釈冷凍機は、大陽日酸 TS-3H100-GM 型希釈冷凍機 (図 4.1) で、高さ 96.1 cm、直径 25.4 cm の円柱形をしている。低温にシール部を持たずサンプル交換が容易であり、液体 He の代わりに 4KGM 冷凍機を同じ真空断熱容器内に設置し 4.2K の低温を作ることで、寒剤としての液体 He を必要としない。ガスハンドリングシステムは自動制御でスイッチを押すだけで 100mK 以下の極低温を得られる。冷却能力は $\sim 20\mu\text{W}$ @ 100 mK、最低到達温度は ~ 80 mK である。

型式	TS-3H100-GM
資料スペース	内径 80 mm × 高さ 120 mm
窓サイズ	外槽部 ϕ 、1K シールド $\phi 40$
温度センサー	酸化ルテニウム抵抗 4 個 (混合器内・外、分溜器、凝縮器)
計測用コネクタ	SMA コネクタ 2 個 同軸ケーブル 室温導入部のみ、配線は無し 配線 48 本 (LOOM ワイヤー 12 ペア 2 セット)

表 4.1: 無冷媒希釈冷凍機の機器仕様。

4KGM 冷凍機	型式	SDRK408
	最低到達温度	4.2K 以下
	冷凍能力 (1st)	30W @ 40K
	冷凍能力 (2nd)	1W @ 4.2K
	メンテナンスサイクル	10000 時間
圧縮機ユニット	型式	F-50L
	冷却水量	7~10L/min
	メンテナンスサイクル	30000 時間

表 4.2: 冷凍機ユニットの仕様。



図 4.1: 無冷媒希釈冷凍機。

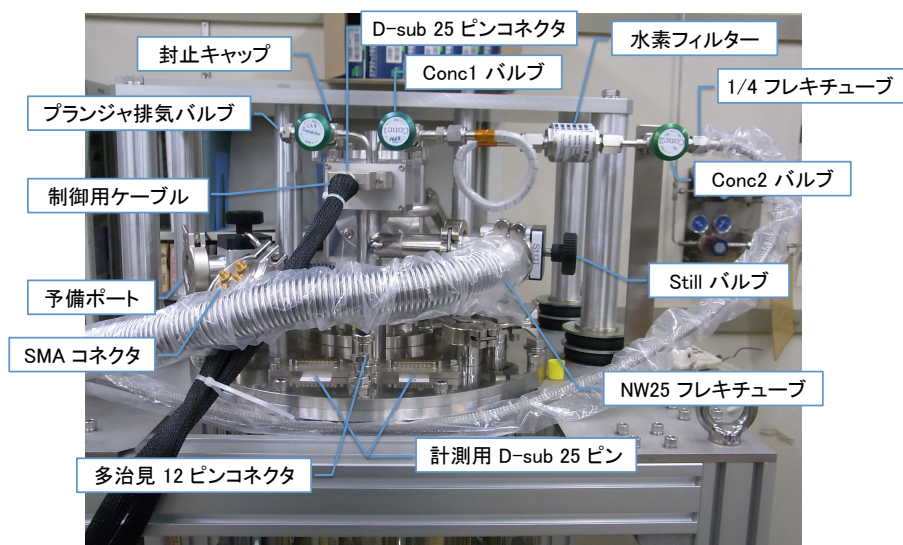


図 4.2: 冷凍機の各名称

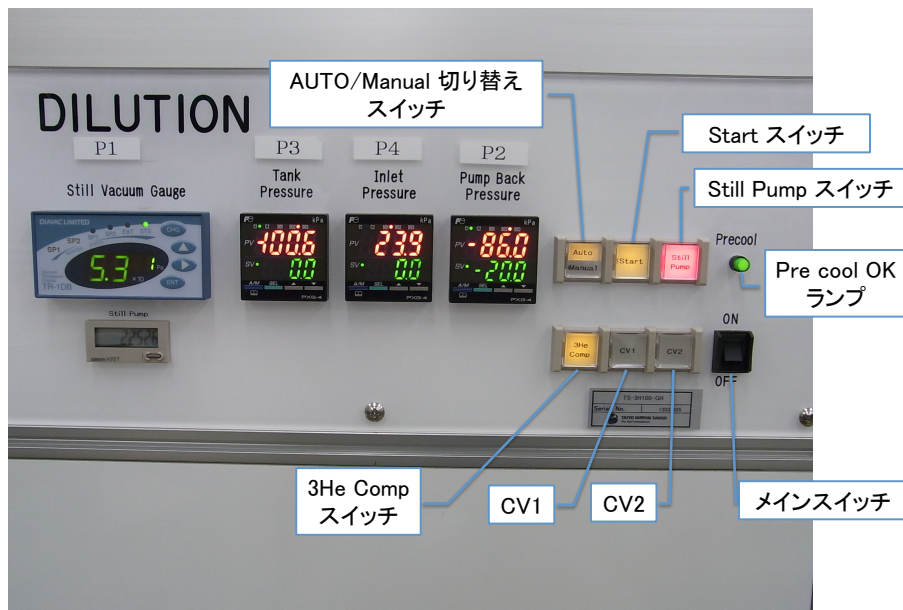


図 4.3: 冷凍機の操作スイッチ



図 4.4: 冷凍機の液体窒素トラップ

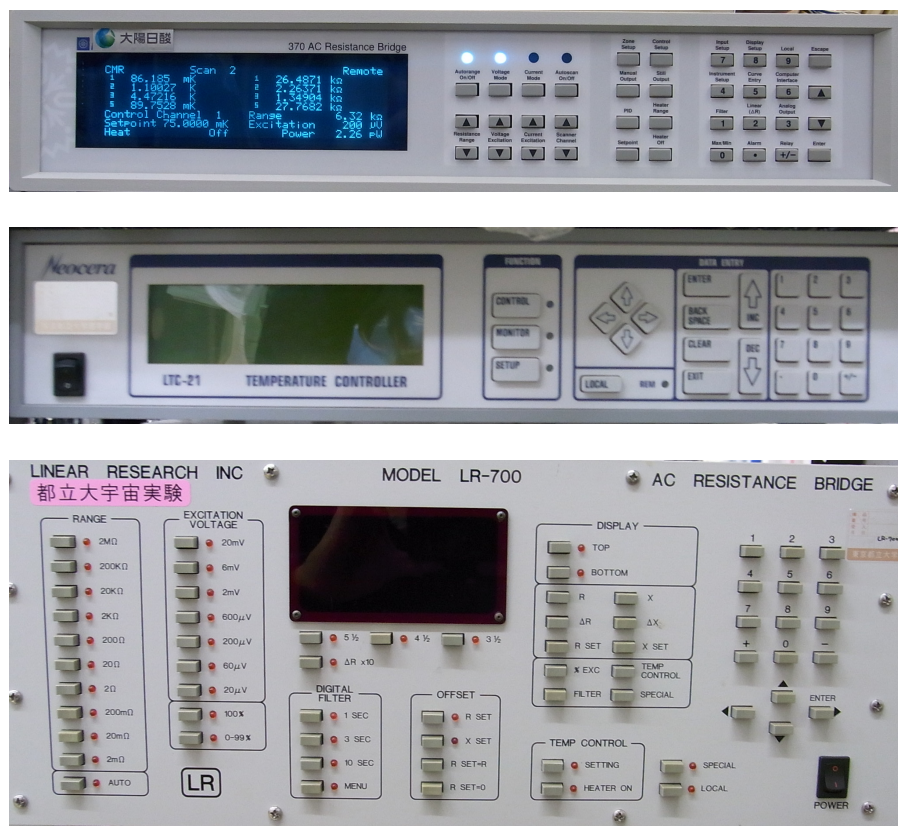


図 4.5: 測定に用いる機器。上から Lake Shore 370 (温度モニター、ヒーターの制御)、LTC-21 (素子の温度測定)、LR-700 (素子の抵抗測定)。

4.2 マイクロプローバー測定とその解析

マイクロプローバー (図 4.6) は微小な対象物に顕微鏡を見ながら針を落とすことで目標の抵抗値を測定する事が出来る装置である。これまでは主に TES ピクセルの PAD 間の導通チェックに用いられていたが、TMU459 では室温での TES ピクセル自体の抵抗を測定することにも用いた。従来の素子では TES 加工の過程で生じた配線の腐食や傷などによって多くのピクセルの導通が取れなくなったため、今回の CMP 積層配線ではどの程度導通が確保できているかについて調べる事が目的である。図 4.7 は全 400 ピクセルで得られた抵抗の値によって色を変化させてマッピングを行った図である。結果、400 ピクセル全てで導通が確認できた。

また、横軸を理論値、縦軸を実測値としたグラフを作成した (図 4.8)。直線はデータ点の一次回帰直線である。この理論値は、(配線材質の抵抗率 ρ) \times (配線長さ l) / (配線断面積 σ) を上下の配線について足し合わせて求めた。

$$R_{\text{pixel}} = \rho \left(\frac{l}{\sigma_{\text{top}}} + \frac{l}{\sigma_{\text{bottom}}} \right) \quad (4.1)$$

ここで σ_{top} 、 σ_{bottom} は上下配線の断面積を表し、Nb の抵抗率は $1.61 \times 10^{-7} [\Omega \cdot \text{m}]$ とした。過去の基板で用いられていた Al 配線と比べると、Al の抵抗率が $2.67 \times 10^{-8} [\Omega \cdot \text{m}]$ なので現在の方が 6.04 倍大きい。配線デザインの変更等により配線長さが短くなっている分だけ抵抗値の増加が抑えられている。今回の結果を見ると、実測値の方が理論値よりおよそ 1.3 倍高い抵抗を示していることがわかる。これは、アライメントが多少ずれたことに加え、Ti エッチング後に見られた腐食のようなものによって TES と上部配線のコンタクトがやや不安定になっていることが原因していると思われる。しかし、直線から大きく外れているデータ点の数はそれほど多くなく、全体的に質のばらつきは大きく無いことがわかる。100 % 近い歩留まりを達成でき、目標とした歩留まり 90 % 以上を満たす結果となった。

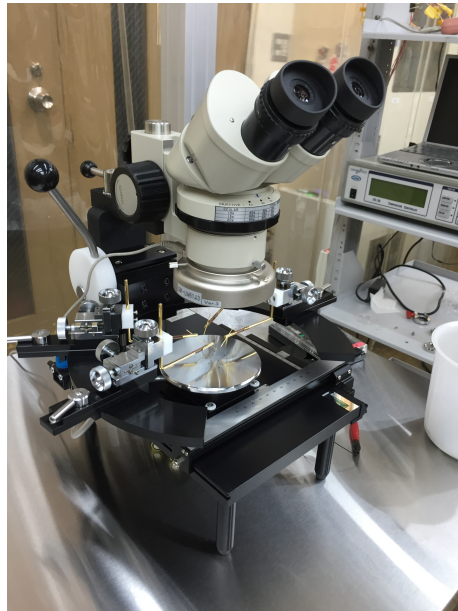


図 4.6: マイクロプローバー

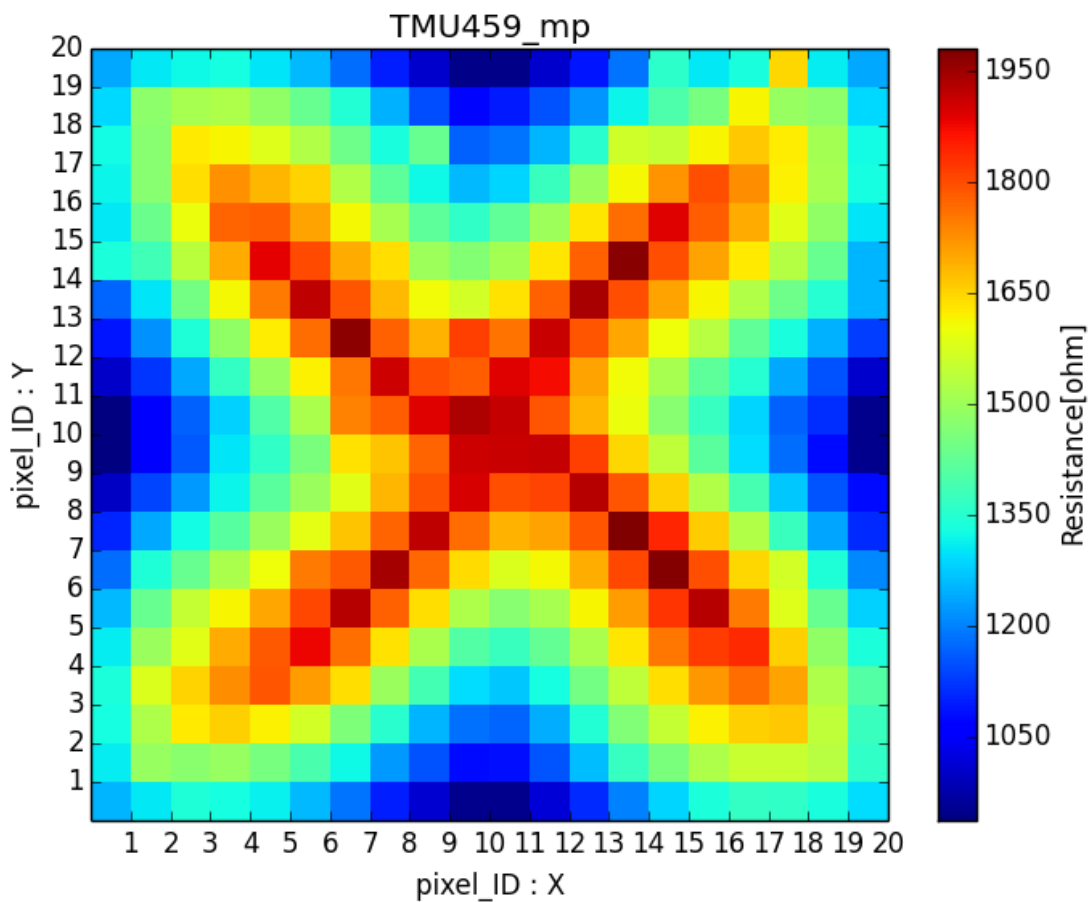


図 4.7: 得られた常温抵抗値のマッピング。

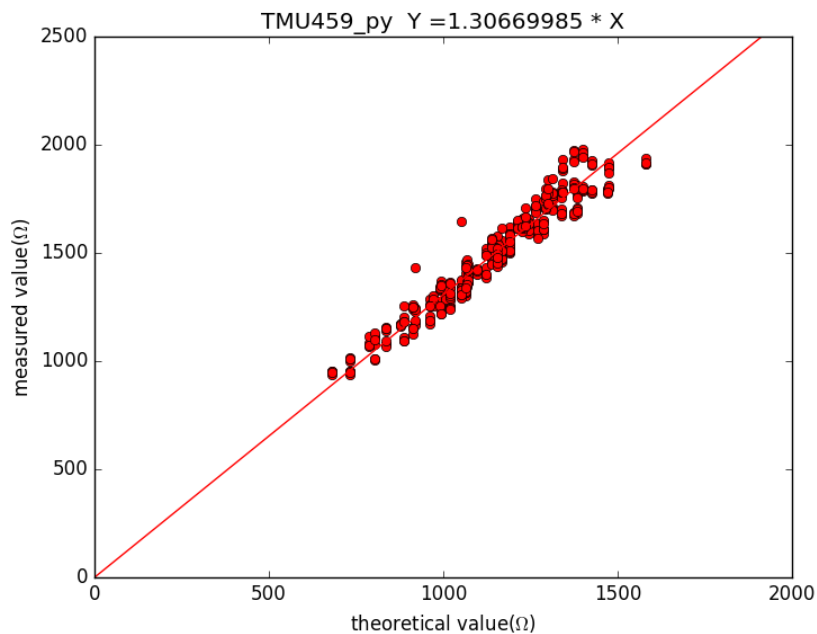


図 4.8: 常温抵抗の理論値と実測値の比較。

4.3 超伝導磁気シールドの性能評価とその効果

磁場によって TES の転移特性や臨界電流の値に影響を及ぼすことが先行研究で示されている [7]。しかし、これまで我々が使用している無冷媒希釈冷凍機で用いられているシールドは、主に無酸素銅 (OFC) で出来ており、比透磁率が 1 程度であるため地磁気 の遮蔽がほぼできていない。そのため素子が地磁気等の外部磁場の影響を受けている可能性があった。そこで、冷凍機に新たな磁気シールドを導入した (図 4.10)。一つは Ni と Mo と Fe の合金で出来ている CRYOPHY というシールドである。OFC の 4 シールド代わりに用いると、比透磁率が 70000 である為、シールド内の地磁気を 1/33 程まで遮蔽できる。また、超伝導磁気シールドを用いても地磁気を遮蔽でき、100 mK シールドに Al 磁気シールドを用いると 1/25 程度まで遮蔽できると予測できる。



図 4.9: Al 超伝導磁気シールド (左) と CRYOPHY 高透磁率シールド (右)。

表 4.3: 磁気シールド情報まとめ。残留地磁気は地磁気を 0.462 G として計算。

	CRYOPHY	Al 超伝導磁気シールド
設置箇所	4 K シールド	100 mK シールド
組成 [%]	Nb: 81 Mo: 5 FE: 14	Al : 97.7 Mg 0.45 0.9 Si: 0.2 0.6 Fe: 0.35 以下 その他: 0.4
比透磁率	70000	—
磁気遮蔽性能	1/33 @4 K	1/25 @100 mK
残留地磁気 [G]	1.4×10^{-2}	4.2×10^{-4}

4.3.1 Al 超伝導磁気シールドの転移温度測定

超伝導磁気シールドの材料である Al 合金の断片を、首都大無冷媒希釈冷凍機を用いて、抵抗-温度測定 (RT 測定) を行ない、Al 合金の転移温度を調べた。なお、測定電流は $1\mu A$, $10\mu A$, $100\mu A$ である。

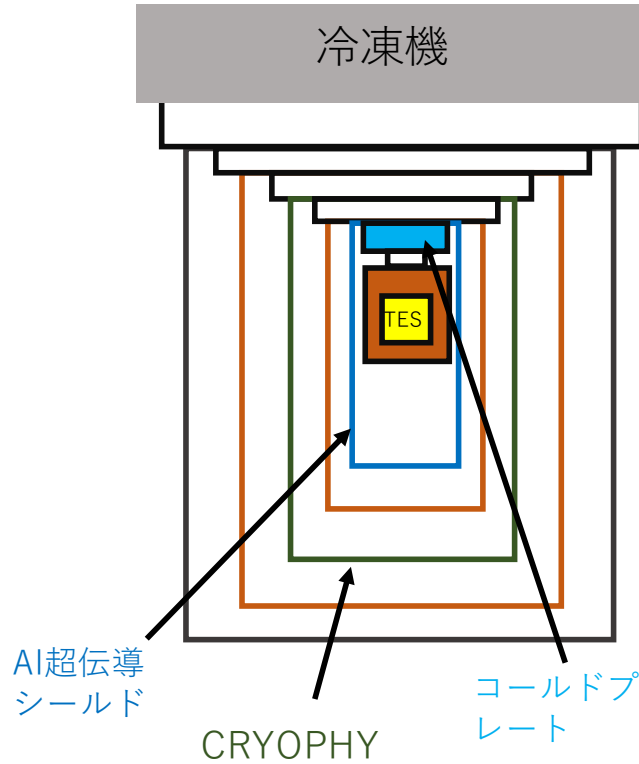


図 4.10: 磁気シールドの導入箇所。

R-T 測定の結果を図 (4.12) に示す。すべての測定電流で、1.10 K から 1.12 K にかけて 3 段階の転移が見られるが、ボンディングワイヤの転移曲線の考察から、3 mΩ から 6 mΩ への転移が Al 合金の転移と考えられる。

これらの転移を区別するために、過去の測定データより、ボンディングワイヤの長さで残留抵抗の値 R_s と常伝導抵抗 R_n の差との相関から、今回のボンディングワイヤの転移前後の抵抗値の差を見積もることにした。今回のボンディングワイヤの長さは 15 mm 前後なので、表 (4.4) より、今回のボンディ

表 4.4: ボンディングワイヤの長さで転移前後の抵抗値の差

測定日	ワイボンの長さ [mm]	転移後の抵抗値 R_n [mΩ]	残留抵抗 R_s [mΩ]	$R_n - R_s$ [mΩ]
2014/12/5	3.5	57.2	3.1	54.1
2016/1/10	15	192.0	59.6	132.4
	5 ~ 10	73.5	2.8	70.7
2016/1/16	5 ~ 10	307.3	249.7	57.6
	5 ~ 10	302.3	244.7	57.6

ングワイヤの転移前後の抵抗値の差は 100 ~ 200 mΩ と見積もることができる。したがって、Al 合金の転移温度は図 (4.12) 中のそれぞれの曲線における 3 mΩ から 6 mΩ の転移か 6 mΩ から 30 mΩ への転移のどちらかであることがわかった。また Al 合金の転移温度は 1.11 K ~ 1.12 K であることも見て取れる。転移が何段階か見えた理由としては、1 K 付近における温度制御が 100 mK 等の TES を動作させる温度帯での温度制御よりも不安定であることが挙げられる。

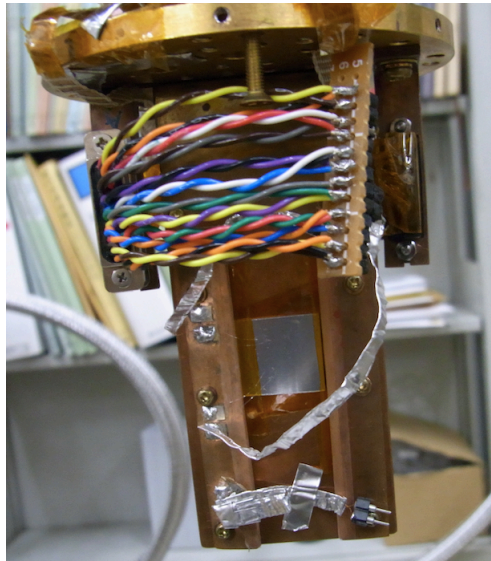


図 4.11: Al 合金の組み込み。

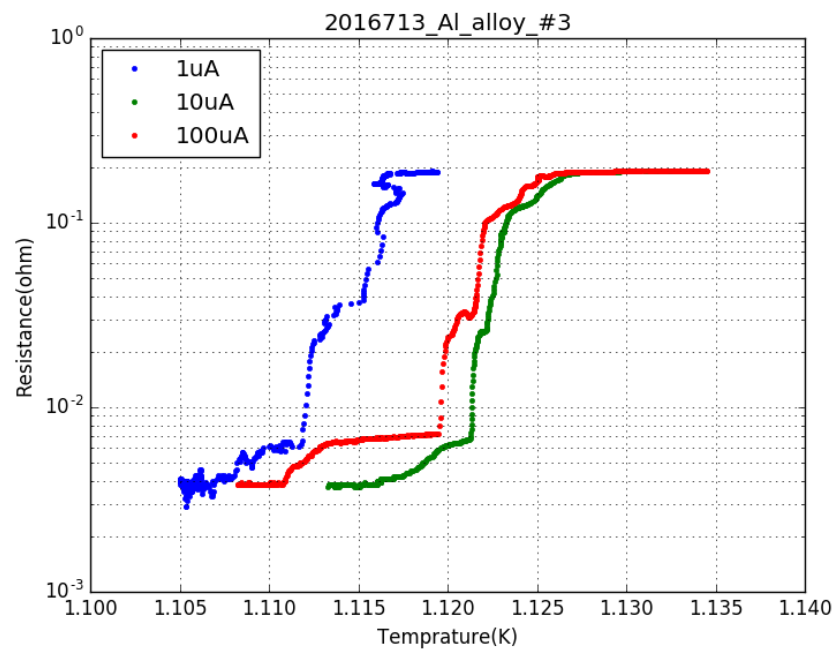


図 4.12: Al 合金の R-T 測定結果。

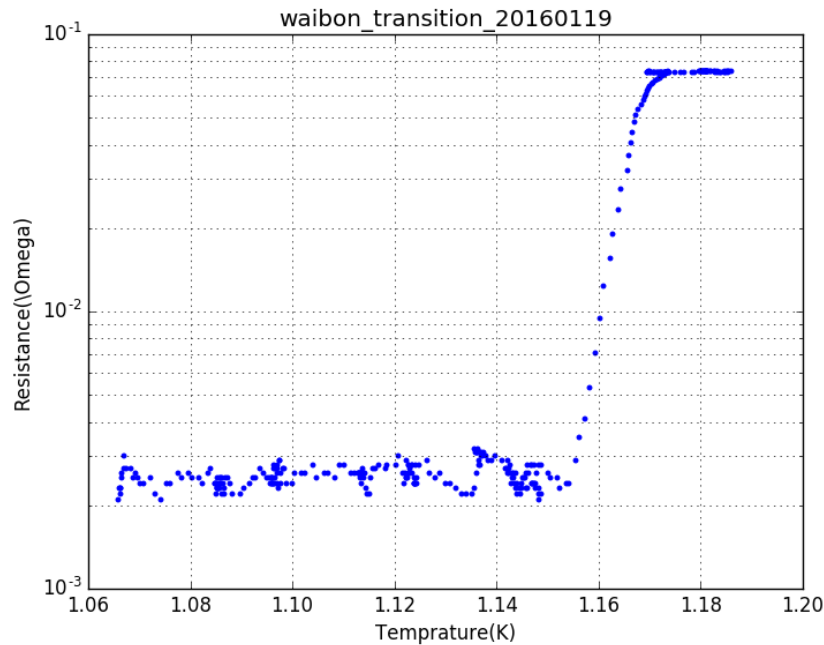


図 4.13: 典型的なボンディングワイヤの RT 曲線。

4.3.2 合金の効果の考察

合金の転移温度の変化

純粋な Al の転移温度は 1.2K である。今回測定した Al 合金は純粋な Al の転移温度よりも低い。これは合金の製作過程中的熱処理過程で生じる特殊な原子組成が原因と考えられている。

熱処理過程とは合金内の原子組成を温度変化によって操作し、硬度を強化することで、以下の 3 つのプロセスで構成される。

1. 溶体化処理：高温に加熱し均一な固溶体（2 種類以上の元素が互いに溶け合い均一な状態になっていること）を形成する
2. 急冷：安定相の形成時間よりも速い速度（Si、Mg 原子の移動速度よりも速い速度）で冷却することで、不安定な組織が形成する
3. 時効硬化：急冷後、ある温度で放置することで Si、Mg 原子が移動し、安定相を形成する

時効硬化時の安定相形成の前に不安定相が析出する。これを GP ゾーンという。我々が用いた Al 合金の場合、Al の結晶面の (100) 方向に Mg と Si の原子が析出する。一般的に超伝導金属の臨界磁場と臨界温度との間には

$$H_c(T) = H_0 [1 - (T/T_c)^2] \quad (4.2)$$

という関係がある。図 (4.14) は純粋な Al と様々な熱処理の条件で作られた Al 合金とについて、(4.2) の関係を示したものである。横軸は温度の 2 乗となっている。fully hardened alloy は最も硬い合金が得られる時効硬化の条件（時効時間 21 時間）で製作した合金である。これを見ると、同じ磁場の条件で fully hardened alloy は pure Al に比べて転移温度が低くなっていることがわかる。この転移温度の変化は、GP ゾーンが関与していると考えられており、GP ゾーンの堆積によるストレス場が合金の転移温度を下げると指摘されている [18]。

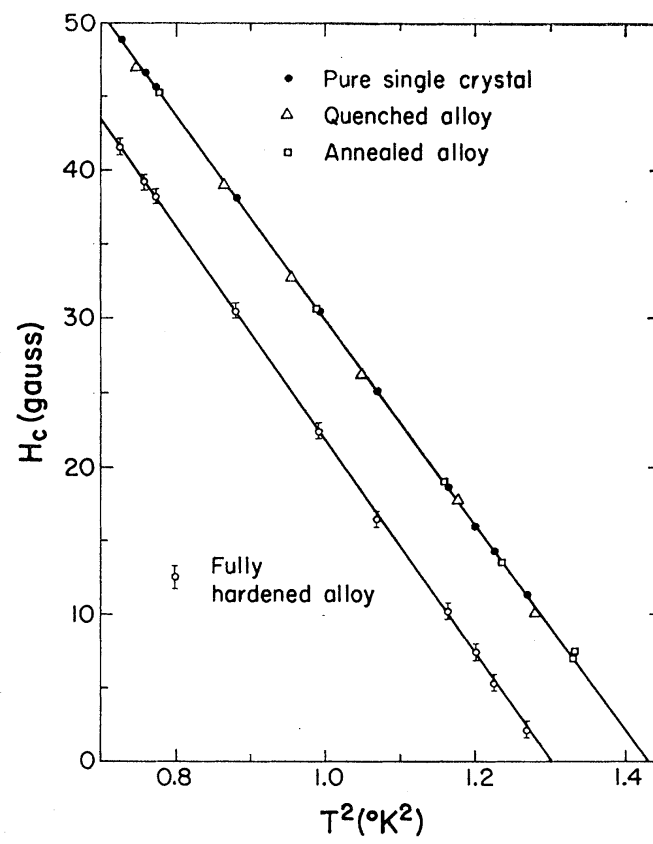


図 4.14: 臨界磁場と転移温度の関係 [18]。

Al 合金の熱伝導率

極低温を実現するためには熱容量も重要であるが、熱伝導率も重要な要素になる。これはある極低温を得たとして、そこでの系の熱伝導率が低く、単位時間あたりに入ってくる熱量が冷却元に運べる熱量より大きい場合、入ってくる熱量と運べる熱量とが fix するところまで、系の温度が上昇してしまうためである。我々はこれまで 0.1 K フランジに無酸素銅を用いていたため、この問題に注視していなかったが、今回、超伝導体を用いるため超伝導体の熱伝導率について考察を行なった。

一般的に金属の熱伝導は自由電子の移動と格子振動の二つが担っている。前者の熱伝導は Wiedemann-Franz law として知られ、熱伝導率 κ と電気伝導率 σ との比が温度 T に対して

$$\frac{\kappa}{\sigma} = LT \quad (4.3)$$

という比例関係にあることを示したものである。ここで L はローレンツ数と呼ばれる定数で

$$L = \frac{\pi^2}{3} \left(\frac{k_B}{e} \right)^2 = 2.44 \times 10^{-8} [\text{W}\Omega\text{K}^{-2}] \quad (4.4)$$

である。超伝導体の場合、式 (4.3) から考えると、電気伝導度が非常に大きくなるため、熱伝導率も大きくなると予想される。しかしこれは間違いである。

超伝導体の場合、電子は自由電子としてではなく、電子同士が対となるクーパー対として存在する。したがってクーパー対の増加に伴い自由電子が減少し、熱伝導率が低下する。このとき電子が担う熱伝導率 κ_{el} は、経験則から

$$\kappa_{el} = \kappa_0 \exp \left[\alpha \left(1 - \frac{T_c}{T} \right) \right] \quad (4.5)$$

という温度依存性をもつ。ここで κ_0 は臨界温度 T_c での熱伝導率である。Al の理論的な熱伝導率を図 (4.15) に示す。実線は式 (4.5) から予想される純度の違う Al の熱伝導率を表す。点線は銅の熱伝導率である。なお、網掛け部分は格子による熱伝導が支配的になり、参照した式では正確に記述できない領域である。

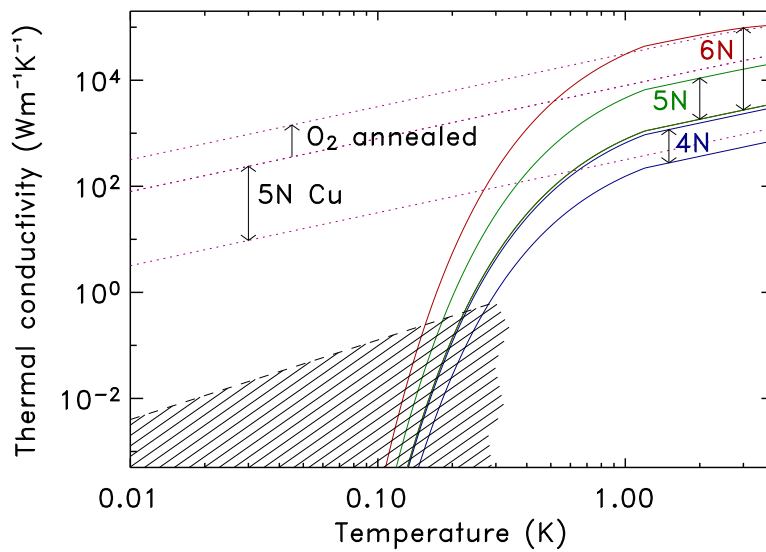


図 4.15: Al の温度と熱伝導率の関係。

4.3.3 磁気シールドと冷凍機の最低到達温度及び TES の転移温度測定

図 (4.10) に示してある箇所のシールドを既存の OFC のものと付け替え、冷凍機の最低到達温度と TES の転移温度 T_c の変化を見る実験を行った。基板は、Ti/Au = 40 nm/40 nm の TMU441 を用いた。この基板は膜厚の条件出しに用いられた基板でパターニングはされておらず、以前 OFC シールドを用いたときの実験では $T_c = 300$ mK であった。本実験では CRYOPHY のみ付け替えた場合と CRYOPH と Al 超伝導磁気シールドの両方を付け替えあ場合を OFC のみの結果と比較した。また、冷凍機の最低到達温度測定ではシールド外にあるコールドプレートと 100mK シールド内にある TES 設置ステージの温度を比較した。

測定結果を図 4.16 および表 (4.5) に示す。冷凍機の最低到達温度に関しては、磁気シールドを用いると温度が上昇することがわかった。これはシールド素材の比熱が関係しているためと考えられ、我々の予想と一致した。一方で転移温度は、式 (4.2) より磁気遮蔽によって基板周りの磁場が抑えられるために転移温度が高くなると予想されたが、結果は逆に下がった。原因としては、次のようなことが考えられる。まず、検出器ステージ内に磁場がトラップされ、磁気シールド導入前よりも高くなっている場合、式 (4.2) によって転移温度が高くなってしまう。また、冷凍機の振動などにより TES ステージに熱流入があった可能性や、ベタ膜測定のために電流のパスが最短経路を通るとは限らず、この影響を受けたとも考えられる。

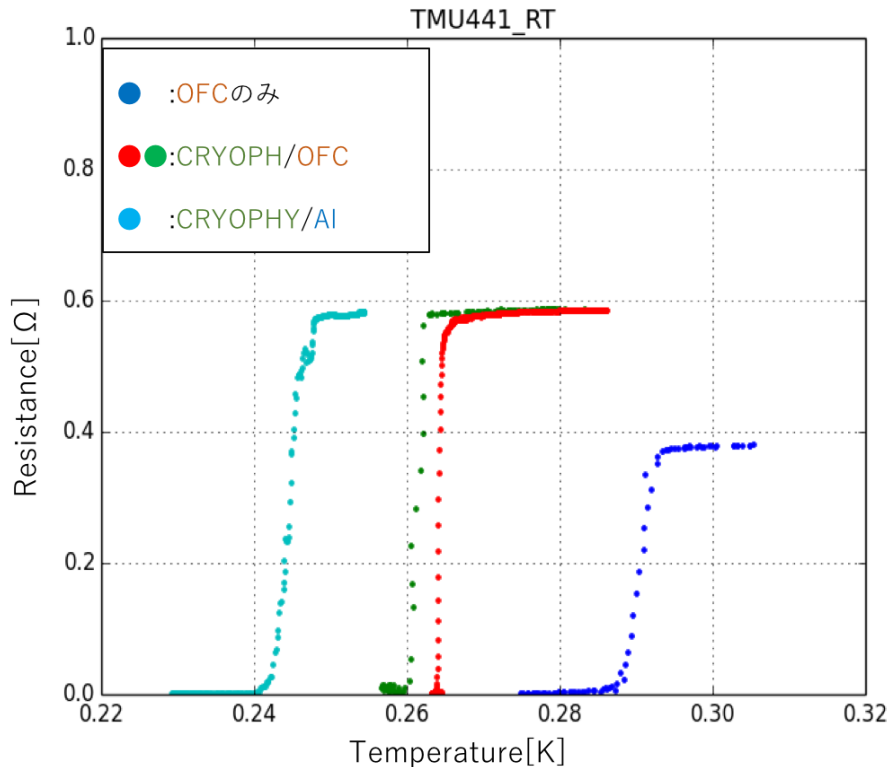


図 4.16: TMU441 の RT 測定結果。

表 4.5: 磁気シールドの付け替え実験まとめ。

4 K / 100 mK シールド	CP 最低温度 [mK]	TES ステージ最低温度 [mK]	TMU441 転移温度 [mK]
FOC のみ	97.344	120	290
CRYOPHY / OFC	99.243	125	260 ~ 265
CRYOPHY / Al	100.17	155	245

第5章 吸収体の製作

5.1 本章の目的

入射してくる X 線は光電効果によって吸収体で止まる。この吸収体は高い吸収効率小さい熱容量、速い熱化という条件を同時にクリア可能な物質が必要であり、我々のカロリメータでは Au を採用している。本章では X 線のエネルギー分解能と透過率から吸収体の厚さを見積もりと、実際の製作とその性能評価について述べる。

5.2 吸収体の厚さ設計

分解能を良くするには、式 (2.10) から分かるように、熱容量 C を小さく、すなわち吸収体を小さくする必要がある。一方で、検出効率を上げるには吸収体を大きくした方がよい。したがって、これらを両立した吸収体の厚みを設計する必要がある。DIOS 衛星で要求されるエネルギー分解能の要求値は 0.5~1.5keV に対して $\Delta E < 2\text{eV}$ であるが、地上実験では ^{55}Fe 線源による 5.9keV 輝線によってエネルギー分解能を測定するため、5.9keV に対しての性能も考えなければならない。

透過率

まず、吸収体の X 線透過率を考える。強度 I_0 の X 線が厚さ d の物質を透過したとき、透過後の強度 I は

$$I = I_0 e^{-\mu d} \quad (5.1)$$

と表せる。ここで μ は物質の線吸収係数であり、単位は $[\text{m}^{-1}]$ である。この式から分かる通り、物質を厚くすればするほど X 線は透過し辛くなる。吸収体の厚みを $1.0\mu\text{m}$ 、 $1.5\mu\text{m}$ 、 $2.0\mu\text{m}$ 、 $2.5\mu\text{m}$ にした場合に X 線が透過する割合を図 5.1¹ に示す。これによって、5.9keV の X 線に対して $1.0\mu\text{m}$ で 41%、 $1.5\mu\text{m}$ で 26%、 $2.0\mu\text{m}$ で 17%、 $2.5\mu\text{m}$ で 11% が透過することがわかった。検出効率また、1.5keV ではどの厚さも 1.5% 以下となった。

熱容量

次に熱容量について考える。エネルギー分解能に寄与する熱容量は、吸収体だけでなく TES 部分も含まれる。極低温下における金属の比熱は、電子比熱と格子比熱の和で書け、

$$c = \gamma T + \beta T^3 \quad (5.2)$$

のように表される。ここで γ は電子比熱係数といい、物質の状態密度で決まる。本計算では Au と Ti のそれぞれの電子比熱係数を $\gamma_{\text{Au}} = 0.729 [\text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}]$ 、 $\gamma_{\text{Ti}} = 1.47 [\text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-2}]$ とした。また、 β はデバイの 3 乗則の定数項に等しく、 $\beta = (12/5)\pi^4 N k_B \Theta^{-3}$ (N : アボガドロ数、 k_B : ボルツマン定数、 Θ : デバイ温度) で決定される。デバイ温度 Θ は、Au が 165K で Ti が 420K であるため、Au の場

¹ 計算は http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html にて行った。

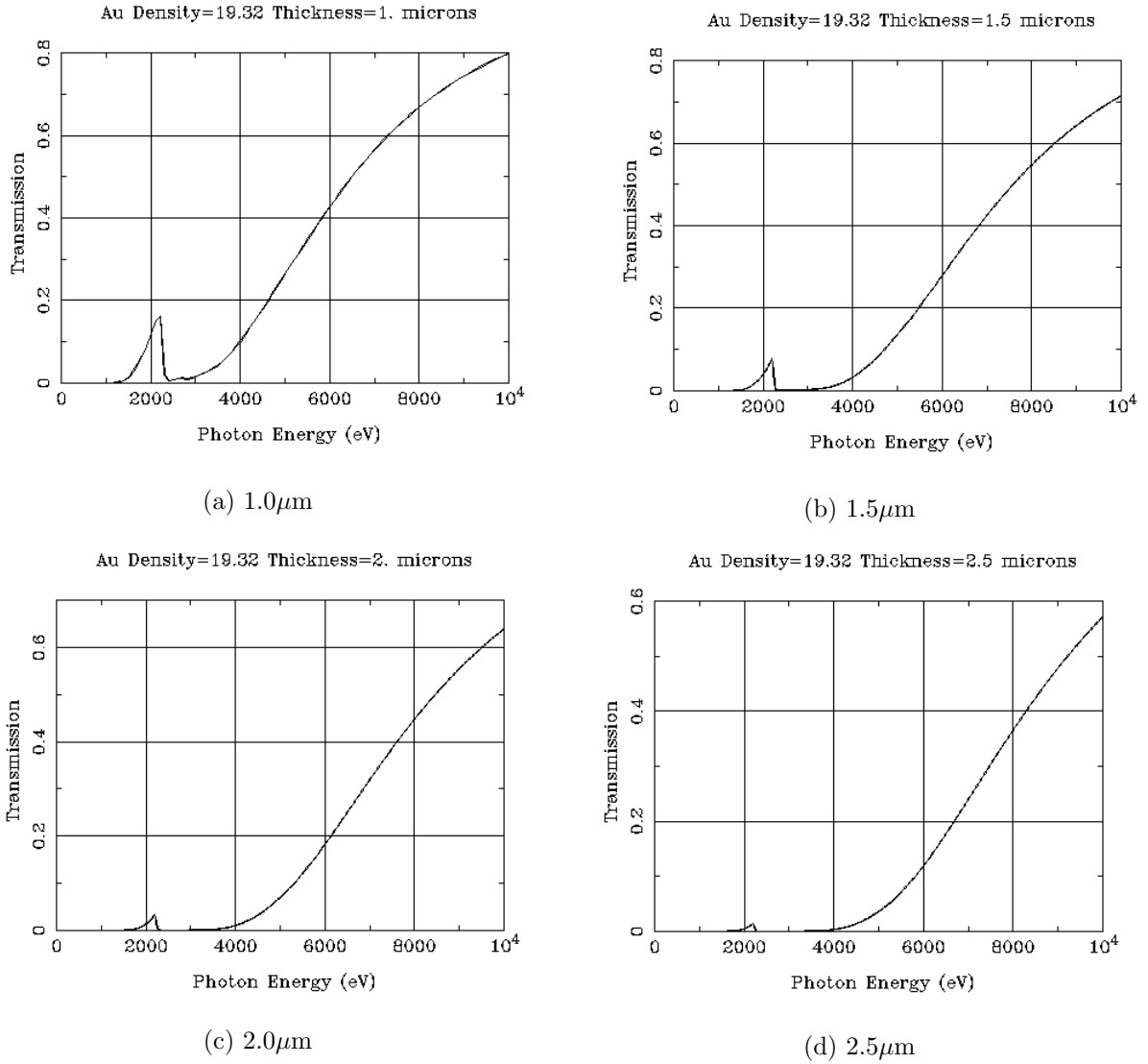


図 5.1: 吸収体の厚さと X 線透過率。

合 $\beta_{\text{Au}} = 3.60 \times 10^{-4} [\text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}]$ 、Ti の場合 $\beta_{\text{Ti}} = 2.18 \times 10^{-5} [\text{mJ} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-4}]$ と求まる。したがって、Au と Ti の極低温下における比熱 c_{Au} 、 c_{Ti} は、単位に注意して、

$$c_{\text{Au}} = 7.29 \times 10^{-4} \times T + 3.60 \times 10^{-4} \times T^3 [\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.3)$$

$$c_{\text{Ti}} = 1.47 \times 10^{-3} \times T + 2.18 \times 10^{-5} \times T^3 [\text{J} \cdot \text{mol}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.4)$$

となる。

TES の膜厚 $\text{Ti}/\text{Au} = 40/80 \text{ nm}$ で $T_c = 150 \text{ mK}$ の場合を考える。式 (5.3)、(5.4) より、単位を mol から g に変換すると、 $c_{\text{Ti}} = 1.34 \times 10^6 [\text{pJ} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}]$ 、 $c_{\text{Ti}} = 1.00 \times 10^7 [\text{pJ} \cdot \text{g}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}]$ となる。熱容量 C は密度 ρ 、体積 V 、比熱 c を用いて $C = \rho V c$ で与えられる。よって TES の熱容量 C_{TES} は、ピクセルの大きさを $200 \mu\text{m} \times 250 \mu\text{m} \times (\text{膜厚})$ 、Au と Ti の密度を $\rho_{\text{Au}} = 1.923 [\text{g} \cdot \text{m}^{-3}]$ 、 $\rho_{\text{Ti}} = 0.4506 [\text{g} \cdot \text{m}^{-3}]$ とすると

$$C_{\text{Au}} = 0.103 [\text{pJ} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.5)$$

$$C_{\text{Ti}} = 0.0884 [\text{pJ} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.6)$$

$$C_{\text{TES}} = C_{\text{Au}} + C_{\text{Ti}} = 0.192 [\text{pJ} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.7)$$

となる。一方、吸収体の熱容量 C_{abs} は、厚さを d_{abs} とすると $V = 120\mu\text{m} \times 120\mu\text{m} \times d_{\text{abs}}\mu\text{m}$ なので、

$$C_{\text{abs}} = 0.39 \times d_{\text{abs}} [\text{pJ} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.8)$$

となるため、1 ピクセル全体の熱容量 C_{pixel} は

$$C_{\text{pixel}} = C_{\text{TES}} + C_{\text{abs}} = 0.192 + 0.39 \times d_{\text{abs}} [\text{pJ} \cdot \text{K}^{-1}] \quad (5.9)$$

となる。よって、このピクセルのエネルギー分解能は、式 (2.10) に式 (5.9) 及び $T=150\text{mK}$ 、 $\alpha = 100$ を代入して、

$$\Delta E \simeq 1.95 \sqrt{0.192 + 0.39 \times d_{\text{abs}}} \quad [\text{eV}] \quad (5.10)$$

と書ける。式 (5.9) を $0.5 < d_{\text{abs}} < 2.5 \mu\text{m}$ でプロットしたものを図 (5.2) に示す。したがって分解能を 2eV 以下にするには、吸収体の厚さを $2.2\mu\text{m}$ 以下にすれば良いことがわかる。

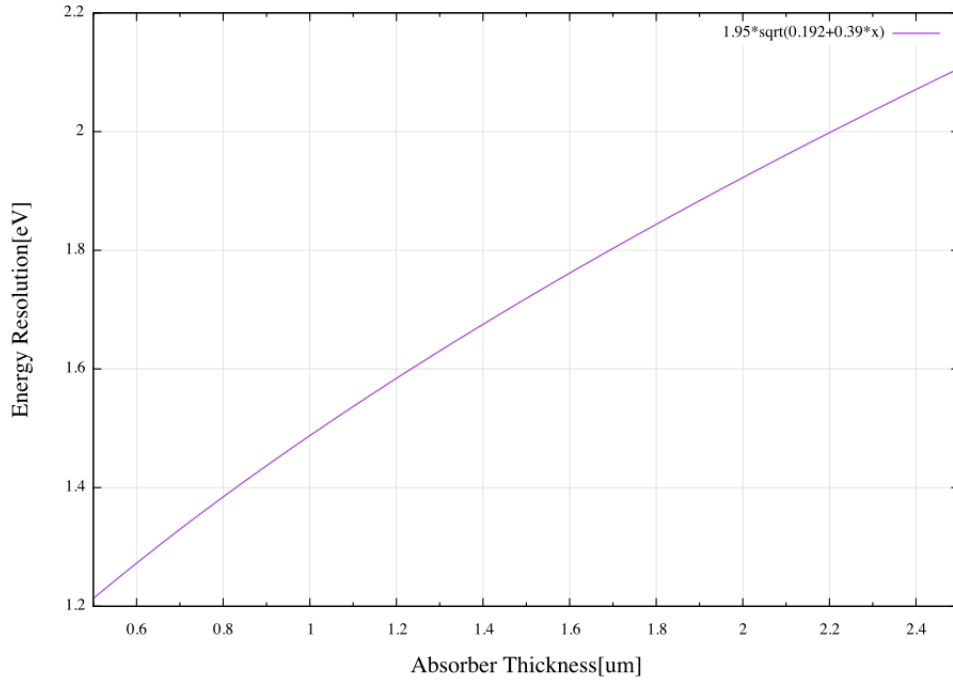


図 5.2: 式 (5.9) のプロット。

厚さの決定

吸収体の厚さと 5.9keV と 1.5keV の X 線の透過率の関係を表 (5.1) にまとめる。この結果より、厚さ $d \mu\text{m}$ の吸収体が 5.9keV の X 線を透過する割合 t を式で表すと

$$t = 102.18e^{-0.894d} \quad (5.11)$$

と近似できる。これにより、 5.9keV の X 線の検出効率を 90% にするには膜厚が $2.6\mu\text{m}$ 以上、 80% にするには膜厚が約 $1.8\mu\text{m}$ 、 70% でも $1.4\mu\text{m}$ が必要であることがわかった。一方で、TES の膜厚 $\text{Ti}/\text{Au} = 40/80 \text{ nm}$ で $T_c = 150 \text{ mK}$ の場合、図 (5.2) より、分解能を 2eV 以下にするには厚さを $2.2\mu\text{m}$ 以下にしなければならない。したがって吸収体は $2\mu\text{m}$ 程度が理想的であると言える。

表 5.1: 吸収体の厚さと 5.9keV と 1.5keV の X 線透過率の関係。

吸収体の厚さ [μm]	5.9KeV の透過率 [%]	1.5KeV の透過率 [%]
1.0	42.1	1.52
1.5	26.5	0.187
2.0	17.0	2.30×10^{-2}
2.5	11.0	2.83×10^{-3}

5.3 EB 蒸着の原理

金属薄膜を形成する方法の一つに Electric Beam (EB) 蒸着がある。蒸着とは真空中で試料にエネルギーを加えて蒸発させ薄膜を形成させる方法であり、EB 蒸着は電子ビームを材料の一部に集中してぶつけて加熱する電子衝突法という方法で蒸着する。スパッタとの違いは、高真空中で金属を蒸発させて製膜しているため、純度の高い薄膜が得られるという点が挙げられる。

5.4 Au 吸収体の蒸着及びパターン形成

5.4.1 パターンフォトリソグラフィー

吸収体の製作は、これまでのプロセスと同様に、基板の洗浄を行った後レジストの塗布・ベイク・乾燥を行う。TES パターニングの際は S1818G レジストを利用したが、吸収体は TES の 10 倍以上の厚みをもつため、リフトオフするためにはより厚く塗布することができるレジストを使用する必要がある。そこで我々は、S1818G より厚みを持って形成可能なレジスト、AZP4620 を使用している。吸収体の形成にはリフトオフ法を用いるが、マスクは吸収体の乗る部分以外がクロムでパターニングされているものを使用する。このプロセスでも、アライメントを行った後に紫外光を AZP4620 の場合は 36 秒照射し TMAH にて現像する。この状態のまま基板表面全体に、金を電子ビーム蒸着にて $1\sim 2\ \mu\text{m}$ 成膜する。吸収体の蒸着には東京大学 満田・山崎研究所有の EB 蒸着装置を用いる (図 5.3)。



図 5.3: EB 蒸着装置。

5.4.2 リフトオフによる金吸収体のパターンニング

基板表面全体に金が蒸着された状態の基板を、アセトンを入れたシャーレに浸す、またはディップパーに固定した状態でアセトンを入れたビーカーに 1 時間以上おく。アセトンによってレジストが流れ、その上に乗っていた金が浮いた状態になる (図 5.4)。そこで小さい使い捨てスポイトを用いてシャーレ内に弱い水流を生み出すと、浮いた金が次第に剥がれていく。吸収体部分以外の金が剥がれ落ちたら、IPA・純水で洗浄を行う。



図 5.4: 金のリフトオフ。

5.4.3 TMU459 の吸収体製作

TES の転移が確認できた TMU459 について、TES と配線のコンタクトの詳しい様子や、逆スパッタ条件の変更から懸念させる自然酸化膜の残留などについて調べるため、FIB-SEM による断面観察および EDX での断面の元素マッピングを行った。観察したのは中央の 1 ピクセルである。観察部分の拡大図を図 5.5 に、観察の結果を図 5.6 に示す。配線と TES の間に段切れなどは見られず、なめらかなコンタクトができている様子がわかる。また、図 5.7 の EDX による元素マッピングの結果を見ると、Nb 配線上に自然酸化膜は残っておらず、100 W× 1 min の逆スパッタ条件で十分に表面のクリーニングができていることがわかった。

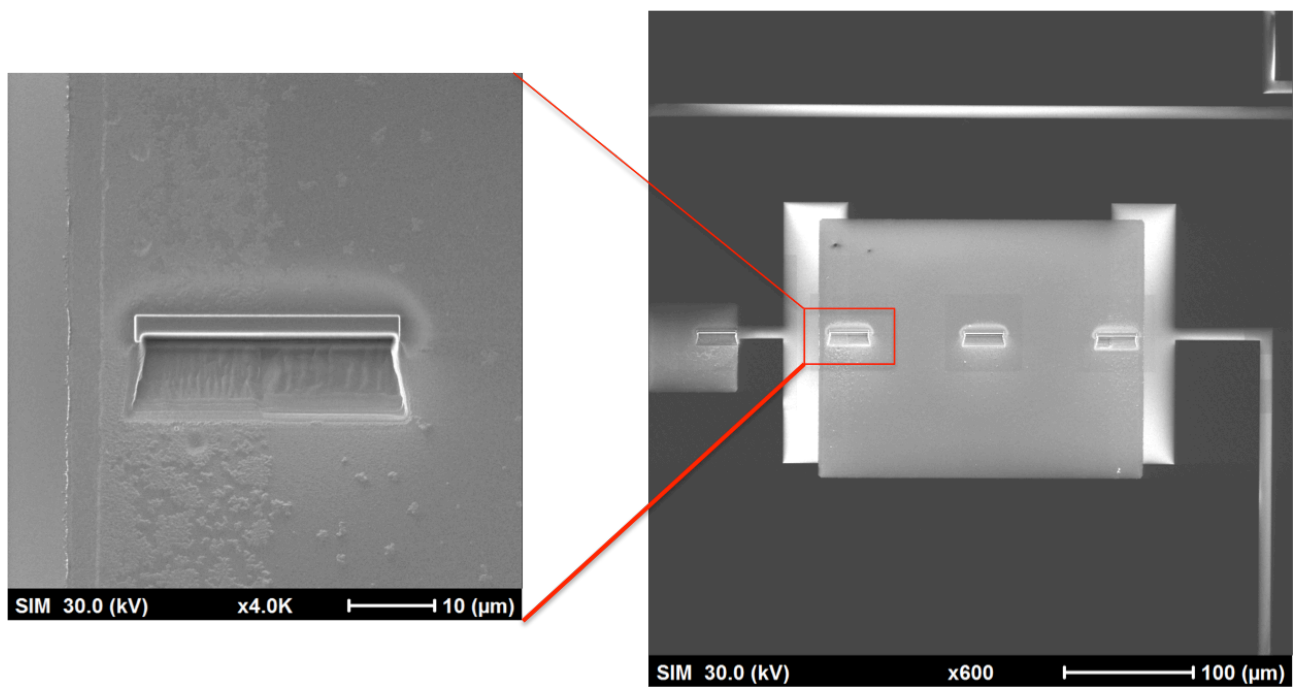


図 5.5: FIB による切削部分。

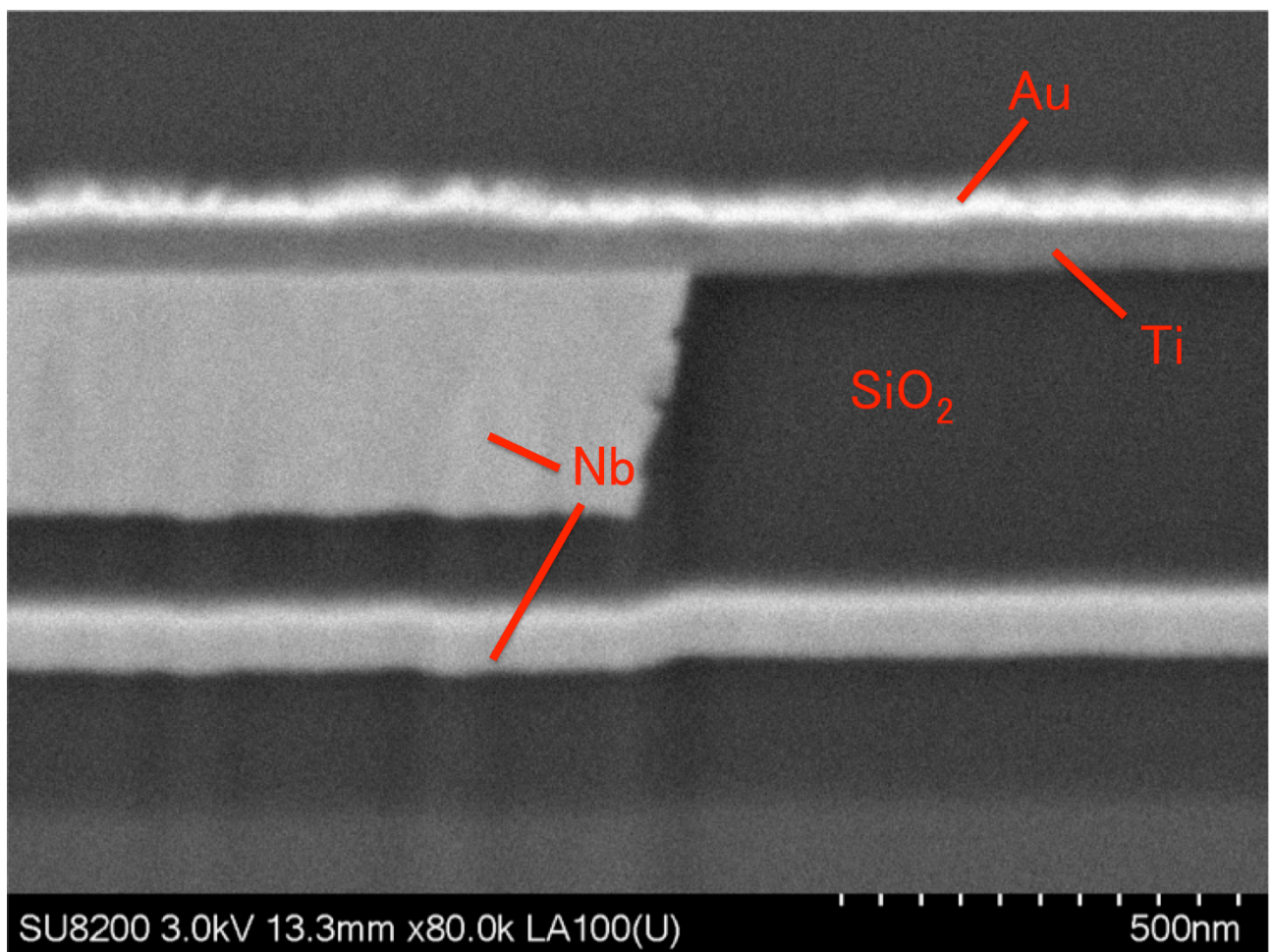
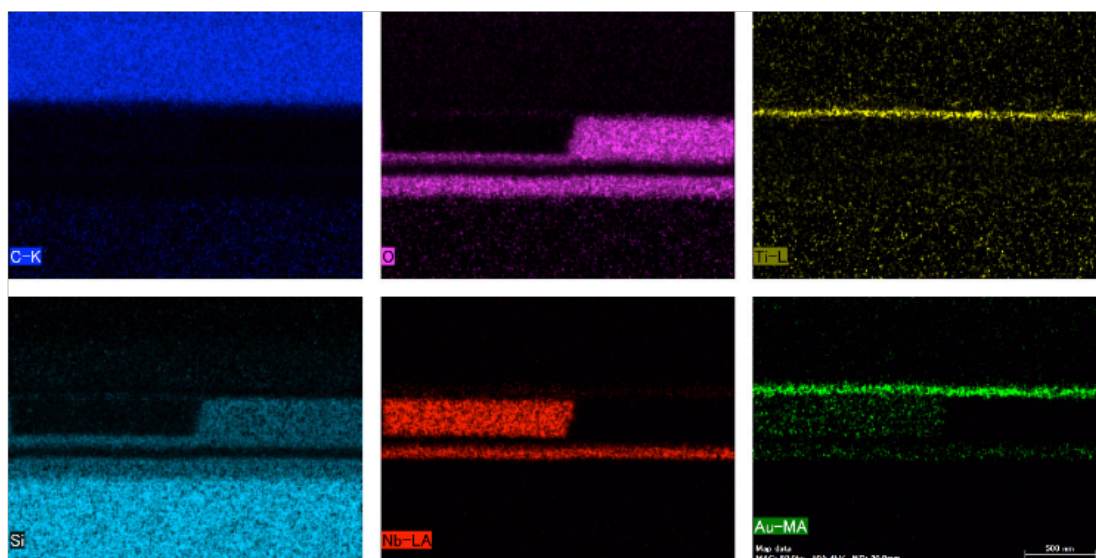
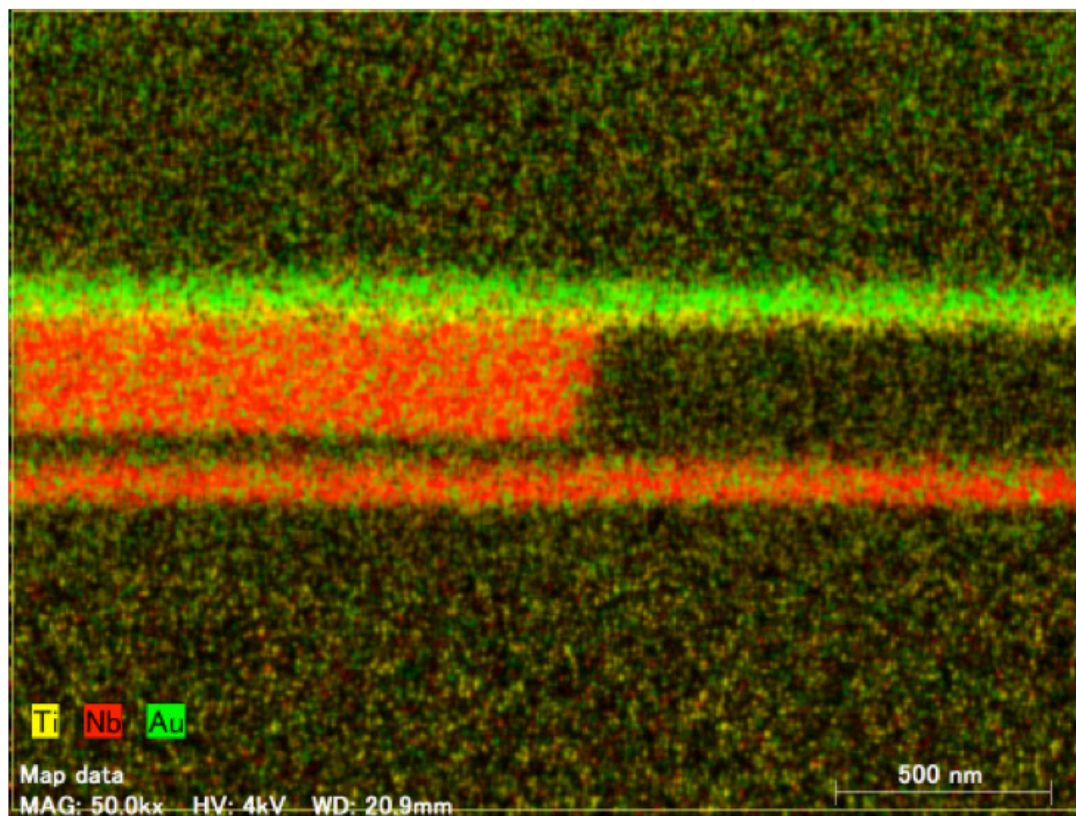


図 5.6: 断面図 (上部配線-TES 接続部分)。



加速電圧: 4 kV
測定倍率: x50k
測定時間: 307s

図 5.7: EDX による元素マッピング。

5.5 加工前後での性能評価

5.5.1 TMU459 の R-T 測定

吸収体を形成した TMU459 素子の超伝導転移試験を行った。測定した箇所はピクセル ID:0318 と ID:0102 の 2 箇所である。図 5.9 および図 5.8 に得られた転移カーブを示す。転移温度はピクセル 0318 が ~ 290 mK、ピクセル 0102 が ~ 280 mK と、TES パターニング後の転移温度である ~ 360 mK から 70 mK 以上低くなっている。これは常伝導金属である Au の吸収体を蒸着させることで近接効果がより強くなったことにより生じた結果であると考えられる。あわせて臨界電流の測定も行った。どちらのピクセルも $100 \mu\text{A}$ の電流では超伝導状態が破れず、我々の目標値を満たしていた (表 5.3)。

表 5.2: 10μ 定電圧バイアスから得られた R-T 測定結果。

Pixel ID	T_c [mK]	極低温@121 mK での抵抗値 [m Ω]	常伝導抵抗 [m Ω]
0318	~ 290	6.6	312.7
0102	~ 280	9.1	302.2

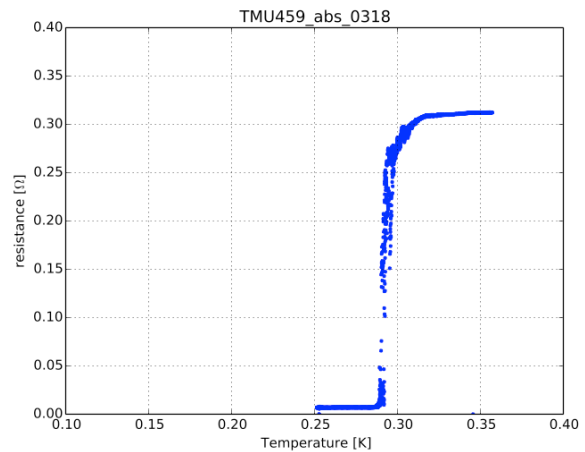
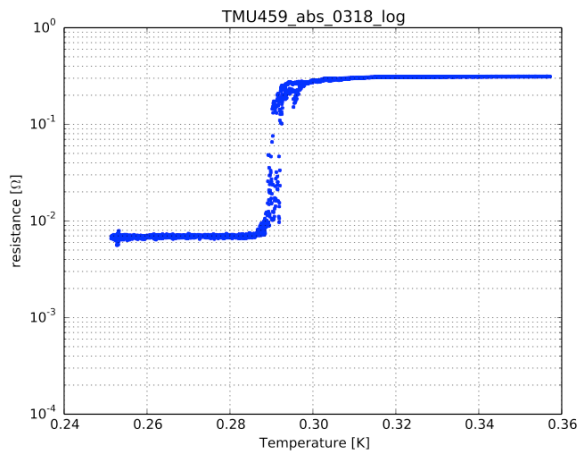


図 5.8: 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 0318)。左:対数スケール、右:線形スケール。

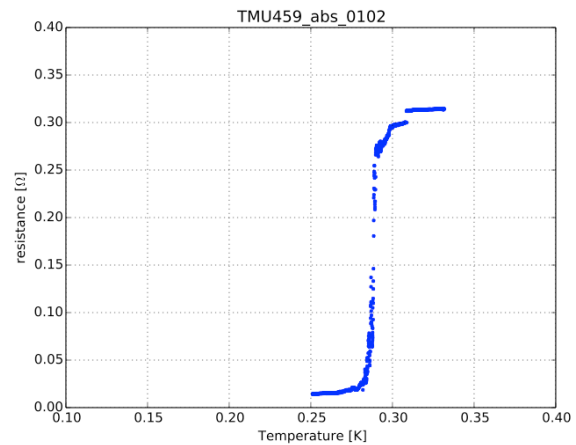
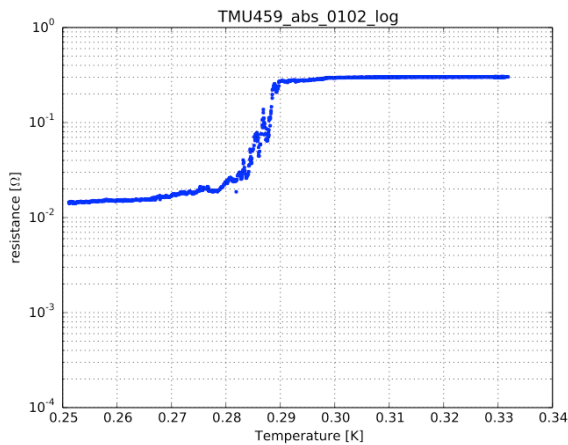


図 5.9: 得られた R-T カーブ (Pixel ID: 0102)。左:対数スケール、右:線形スケール。

表 5.3: 臨界電流測定結果。

Pixel ID	臨界電流 [μA]
0318	> 300
0102	> 100

第6章 メンブレン加工プロセスの構築

6.1 本章の目的

TES に吸収体を載せた後、熱を熱浴へ排熱するサーマルリンク部分となるメンブレンを形成する。我々が用いている基板は図 6.1 の示すように、 $380\text{ }\mu\text{m}$ のシリコンウエハの両面に、 $1\text{ }\mu\text{m}$ の SiN_x 膜と 500 nm の SiO_2 膜が存在している。これらと $380\text{ }\mu\text{m}$ の Si 層をそれぞれ適した方法でエッチングを行い、メンブレンを形成していく。パターニング後の TES1 ピクセルは $200\text{ }\mu\text{m} \times 250\text{ }\mu\text{m}$ の大きさだが、メンブレンの大きさはそれより一回り大きく $300\text{ }\mu\text{m} \times 350\text{ }\mu\text{m}$ で設計されている。本章では各膜のエッチング原理と具体的方法を説明した後、我々の TES 基板におけるメンブレン加工プロセス構築について述べる。

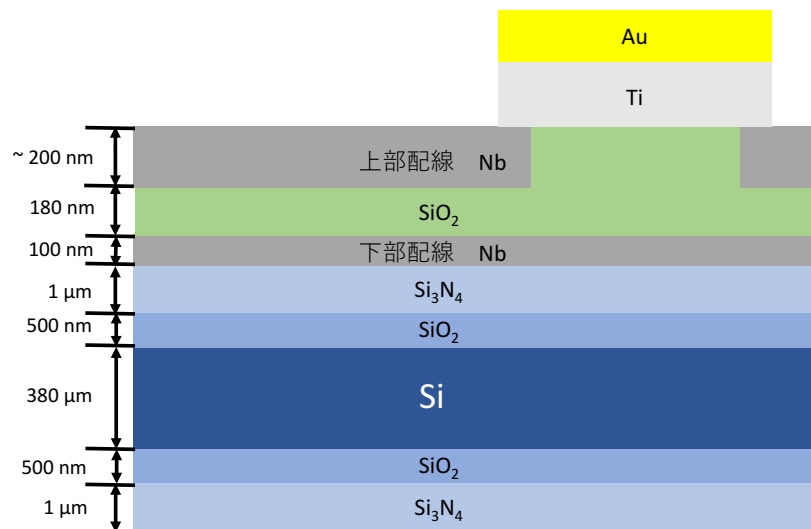


図 6.1: メンブレン加工前の基板断面図

6.2 エッチング原理

エッチングは、大きく分けてドライエッチングとウェットエッチングの 2 つがある。ドライエッチングとは、反応性の気体（エッチングガス）やイオンなどによる化学的な反応で材料などを削る方法である。設備が高価でエッチング速度は遅いが、フォトレジストとの選択性が高く微細加工に向いている。

一方、ウェットエッチングは化学薬品の水溶液を用いて目的の金属などを選択的に削る方法である。この方法はドライエッチングに比べて、早く加工ができ、基板へのダメージが少ないといった利点がある反面、等方性エッチングの場合にはフォトマスクの下までエッチングされてしまい、微細加工には向かないという欠点がある。

以下は、我々の用いた DRIE 法と BHF によるウェットエッチングの原理について述べる。

6.2.1 DRIE によるドライエッチング

DRIE(Deep Reactive Ion Etching) 法はドライエッチングのうちの反応性イオンエッチング (RIE) の一種であり、高アスペクト比でエッチングを行う方法である。

DRIE 法では、ICP(Inductively Coupled Plasma source：誘導結合型プラズマ源)-RIE 装置が多く採用されている (図 6.2)。高周波電流をコイルに流すことで磁場を発生させる。これが時間的に変化すると、Lenz の法則により、磁場を打ち消すような誘導電場を起し電子を加速させる。この電子がガス分子などと衝突をしてプラズマを発生させる。このときエッチングガスは励起してイオンやラジカルになり、これらの粒子がシリコン基板等と反応することでエッチングされる。しかしチェンバー内で起こる反応は、スパッタリング、ラジカル反応やイオンアシストメカニズム (イオンとラジカルの複合反応) と非常に複雑になっている。

通常、ドライエッチングはその仕組み上側壁方面にもエッチングが進んでしまう等方性エッチングである。そこで、ドライエッチングである方向だけエッチングをする異方性エッチングを行う場合、ボッシュプロセスと呼ばれる工程を用いる。ボッシュプロセスは、 SF_6 などのエッチングガスと C_4F_8 といった保護膜を形成するパシベーションガスを交互に切り替えてエッチングする手法である。CF 系の物質が保護膜を形成しすることで、等方性エッチングガスを用いながら異方性エッチングを実現している。しかし、CF 系ガスが乖離する際に発生する F^* が微小ながらエッチング反応を起こすため、 C_4F_8 を入れすぎて逆にエッチングが悪化する場合もあるため注意が必要である。エッチング後にスキヤロップ (scallop) と呼ばれる特徴的なエッチング痕を残し、これはボッシュプロセス特有の形状をしている。ボッシュプロセス工程の概要を図 6.3 に示す。

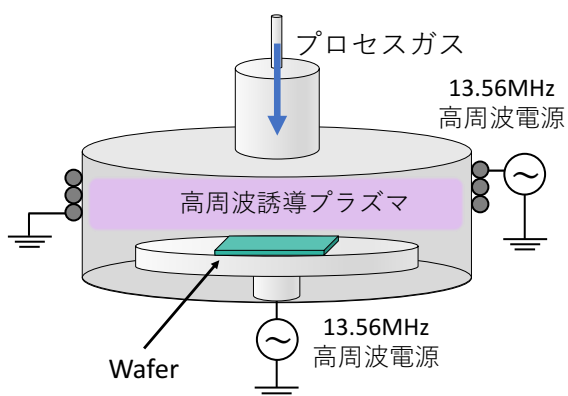


図 6.2: ICP 装置内部の概略図。

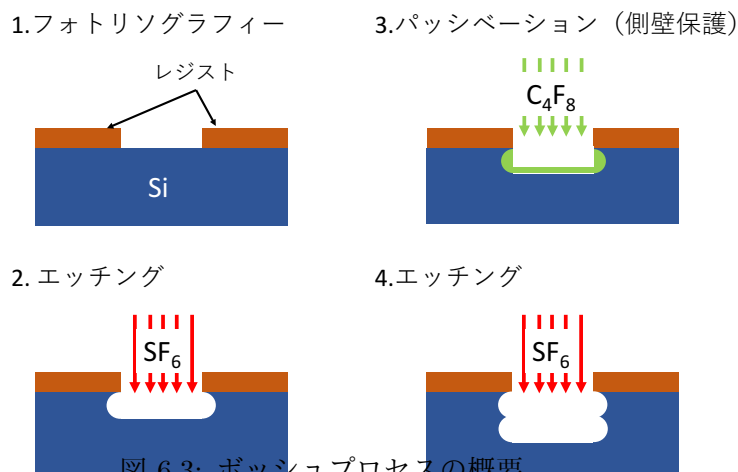
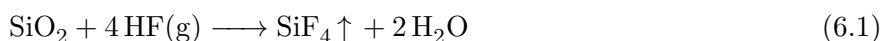


図 6.3: ボッシュプロセスの概要。

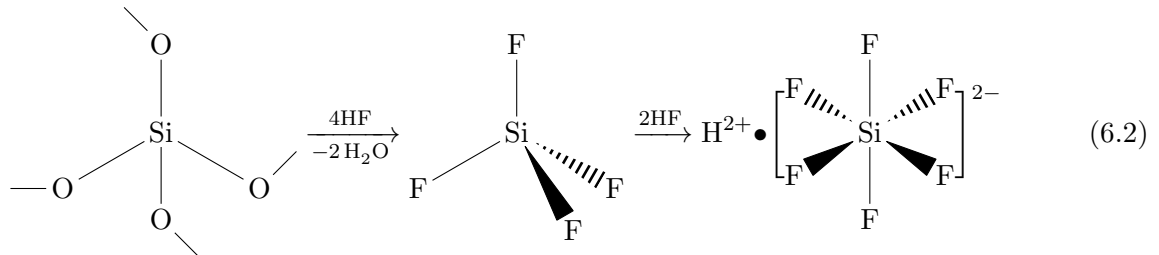
6.2.2 HF によるエッチング

SiO_2 のエッチングではフッ化水素酸 (HF) を用いる方法が一般的であるが、HF の状態によって反応が若干異なる。気体の HF によるエッチング、すなわちドライエッチングの場合は次の通りである。

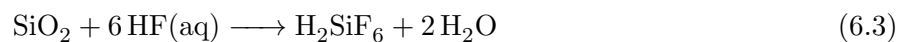
SiO_2 は SiO_4 四面体を基本単位とした立体網目状の共有結合の結晶である。この SiO_2 結晶中心にある Si^{4+} に F^- が攻撃して新たな結合を作ると同時に、背後にある Si-O の結合が切れる。これを繰り返すことで SiF_4 が生成される。従って、HF(g) による SiO_2 の溶解反応は式 (6.1) で表される。



水溶液中で行われるウェットエッチングの場合、 SiF_4 からさらに 2 分子の HF が配位結合をし、水溶性のヘキサフルオロケイ酸イオン $[\text{SiF}_6]^{2-}$ のという錯イオンとなる。これをふつうヘキサフルオロケイ酸 H_2SiF_6 として表す。この流れを構造式に表すと、



となり、反応式で表すと式 (6.3) になる。



SiO_2 のウェットエッチングを行う際、バッファードフッ酸 (以下、BHF) と呼ばれる HF とフッ化アンモニウム NH_4F の混合液を用いることがある。これは、 NH_4F を混ぜることにより、液中の pH を上げて HF と SiO_2 の反応を緩衝させる目的がある。 SiO_2 から SiF_4 の生成は、酸素原子へのプロトン (H^+) 付加が起きてから脱水し、 Si-F の結合が起こるという機序である。よって、液中のプロトン濃度が高い、すなわち pH が低いほど溶解反応が活発になり、逆に pH が高いと反応が緩やかになる。反応速度をあえて遅くすることにより、エッチングを細かく制御することが可能になる。

6.3 メンブレン加工手順

メンブレン加工プロセスの概略図を図 6.4 に示す。メンブレン加工はすべて宇宙研内にある宇宙ナノエレクトロニクス用クリーンルーム内にて行う。

6.3.1 両面アライナーによるフォトリソグラフィー

メンブレン加工の前に、フォトリソグラフィーを用いてメンブレンのパターニングを行う必要がある。アセトン、イソプロピルアルコール (IPA) 及び純水で基板表面を洗浄及び乾燥させた後、レジストと基板との密着性を高めるために 100°C に温めたデジタルホットプレートで 1 分間ベークをする。ベーク温度が TES パターニング時より低い、これは TES が 100°C になると超伝導転移に影響するとされているため、TES 製膜後は 100°C 以下でベークする必要がある。ベーク後にスピncerコーターで基板両面にプライマー HMDS とレジストを塗布する。HMDS は基板表面を疎水性にしてレジストとの密着性を良くするために塗布する。HMDS 塗布後に 1min ベークする。レジストは、TES パターンがある表面に保護レジストとして S1818G に、裏面に S1830G を塗布する。スピncerコーターは 3000 rpm を 50 s 行うレシピを用いる。塗布後は再度ホットプレートでプリベークをする。

レジスト塗布後、両面アライナーを用いてフォトマスクと基板のアライメントマークを合わせ、露光を行う。フォトマスクは「multilayer - 140729 × 20」を用いた。アライメントを合わせるには、まず装置にマスクのみをセットし、真空吸着させたら装置上部のモニターにアライメントマークが映るように下部カメラを移動する。マークの位置が決まったらモニターのキャプチャを撮る。次に基板を裏返してステージに置くが、この時マスクを動かさずステージを引き出してセットする。基板を真空吸着させたら、モニターを見ながらマスクとマークと合うように基板のマークを合わせる (図 6.6)。アライメントがずれたままエッチングを行うと、下部配線が全て露出せず一部が埋まった状態になってしまう可能性

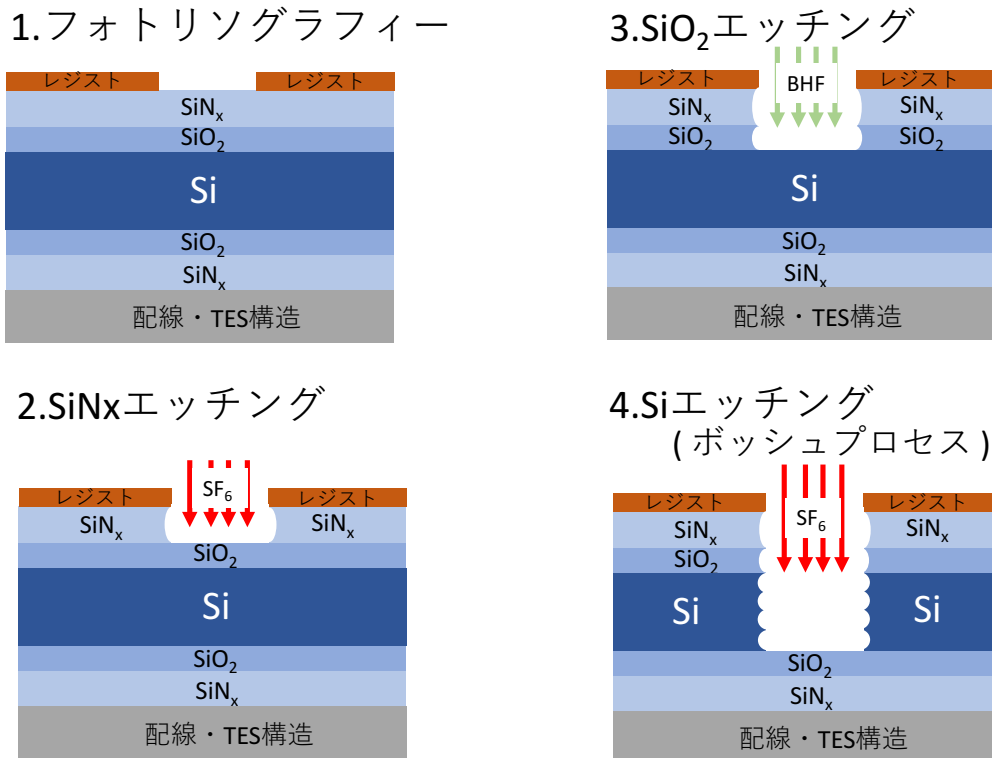


図 6.4: メンブレン加工プロセスの概略。

がある。こうなると熱がうまく TES に伝わらず、エネルギー読み出し正確にできない恐れがある。そして配線パターンとメンブレンパターンの余裕が $100\mu\text{m}$ 程度のため、極力アライメントを正確に合わせる必要がある。アライメントが合ったらコンタクトを行い、紫外線で光露光を開始する。

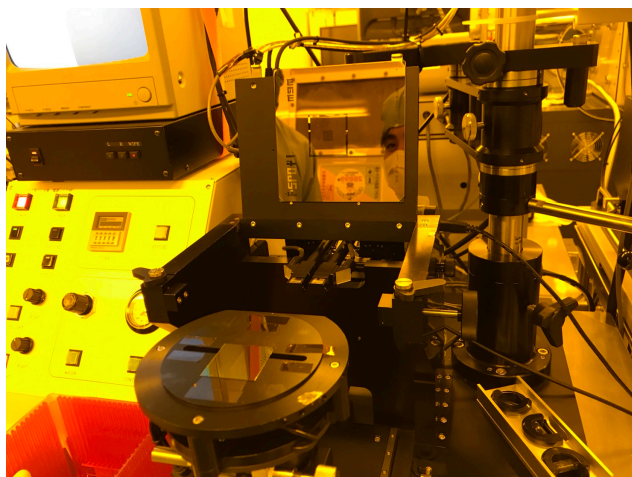
露光が完了したら、水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) 2.38 % を用いて 9min 現像を行い、3min の純水洗浄を 2 回行う。S1830G はポジ型レジストなので、露光された箇所のレジストが溶け、マスクで覆われた領域が残る。

6.3.2 エッチングによるメンブレン化

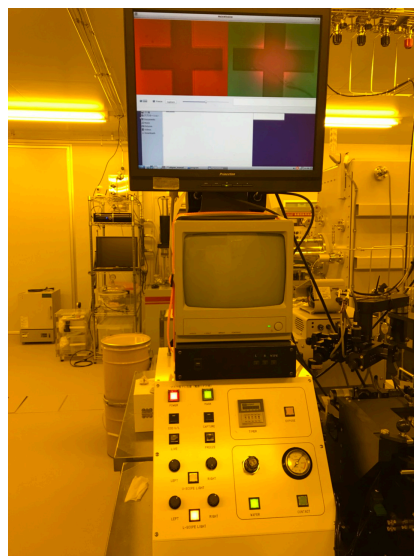
SiNx エッチング

現像が完了すると、基板構造に合わせてエッチングを行う。まず初めに、一番外側にある SiNx 膜のエッチングを宇宙研クリーンルーム内にある住友精密工業製 ICP-RIE 装置「MUC-21」を用いて行う。装置に組み込む際、アルミ製の台座の上に拡散ポンプオイルを付属のスポイトで 1 滴垂らし、ベンコット等で薄く伸ばしてから基板を台座に載せ、基板の四辺をカプトンテープで空気を抜きながら二重に固定する (図 6.7)。これは、テープが一重であったり空気が入っていることにより、エッチング中に拡散オイルが飛散しブラックシリコン (不純物等がマスクの役割をしたため削り残ってしまうシリコンのこと) が発生してしまうのを防ぐためである。

我々の基板にある SiNx 膜は $1\mu\text{m}$ と比較的薄いため、 SF_6 ガスのみのエッチングを行う。一般的に SF_6 の選択比は $\text{Si} < \text{SiNx} \ll \text{SiO}_2$ の順のため、今回は SiO_2 膜がエッチングストッパーとなる。熱ダメージを軽減するため、基板冷却温度は 0°C に設定する。SiNx 膜エッチング時の ICP-RIE 装置レシピを表 6.1 に示す。エッチング完了は光学顕微鏡による観察によって行う。



(a) ステージ。



(b) モニター。

図 6.5: 両面アライナー。

表 6.1: ISO_1min の 1 サイクル条件

	Gas	Power(W)	Times(s)	Flow rate(sccm)	Pressure(Pa)
Etching	SF ₆		任意	200.0	

SiO₂ エッチング

SiN_x 膜エッチング後、アルミ台座から基板を剥がし、SiO₂ 膜の BHF によるウェットエッチングを行う。具体的な方法は、テフロン製のピーカーに基板が浸る程度の BHF を入れ、その中に基板を浸けておく。BHF はダイキン工業製 BHF63 (フッ化アンモニウム NH₄F :19%、フッ化水素アンモニウム NH₄F·HF :18%) を用いる。SiO₂ 膜の下にある Si 層は HF に溶解しないので、Si 層がエッチングストッパーとなる。エッチング終了後は純水で十分に洗浄する。

Si エッチング

再びアルミ台座に基板を乗せ、ICP-RIE 装置で Si 層をエッチングする。Si 層は 380μm の厚みがあるため、ボッシュプロセスを用いてエッチングを行う。選択比から、SiO₂ がエッチングストッパーになる。一度にエッチングを行おうとすると、場所ごとにムラができてしまうため、100μm 程度掘れたら一度取り出し、基板の向きを変えて組み込む必要がある。Si 層エッチング時の ICP-RIE 装置レシピを表 6.2 に示す。プロセス後に光学顕微鏡で観察し、下部配線が完全に露出していることを確認できたら終了となる。

表 6.2: TES_High_Speed の 1cycle 条件

	Gas	Power(W)	Times(s)	Flow rate(sccm)	Pressure(Pa)
Etching	SF ₆	2600	3.0	550.0	9.0
Etching(boost)	SF ₆	2600	6.4	550.0	18.0
Passivation	C ₄ F ₈	1000	3.0	400.0	8.0

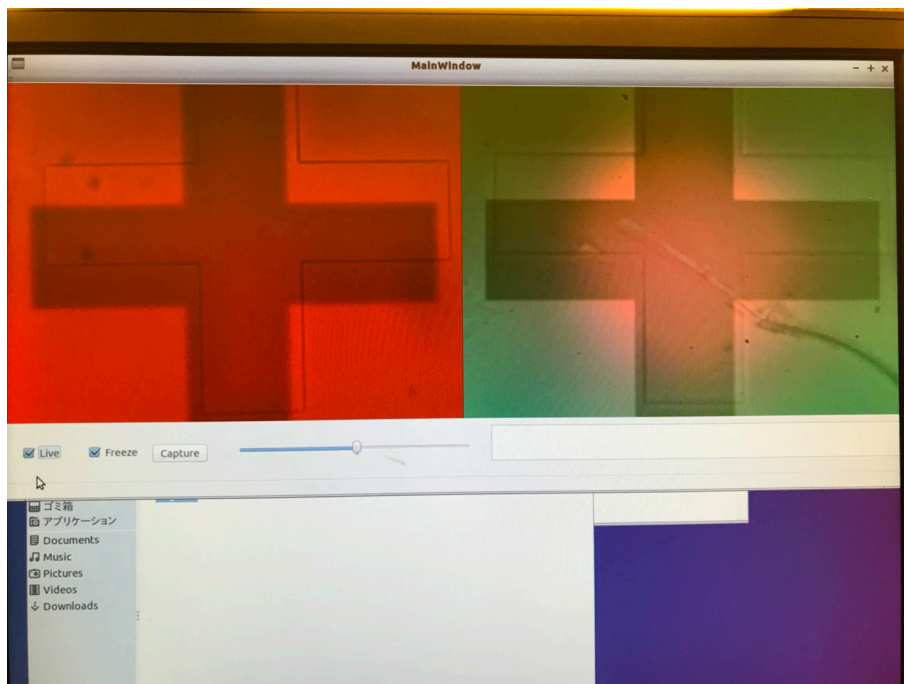


図 6.6: アライメント合わせの様子。

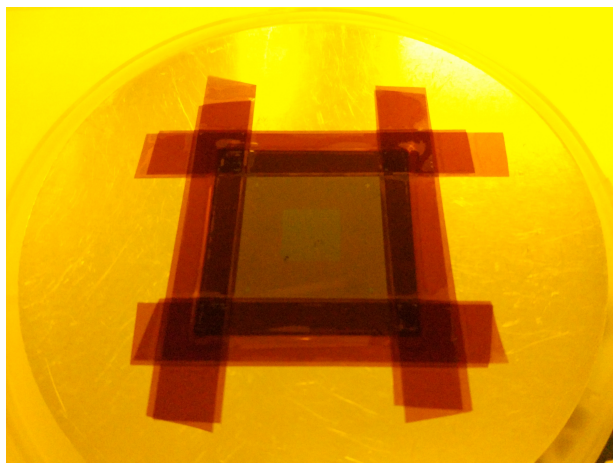


図 6.7: 基板の四辺をカプトンテープで二重に固定。

6.4 TMU459 基板のメンブレン加工に向けた条件出し

我々は積層配線デザインを採用してから初めて超伝導転移が確認できた TMU459 基板の X 線照射実験に向け、メンブレン加工のプロセス構築を行った。テスト用基板を用いてエッチング時間等の条件を出した後、本番として TMU459 の加工に臨む計画を立てた。

6.4.1 TMU445 を用いたテスト加工

最初に TMU445 基板を用いて加工条件を出すことにした。TMU445 は $\text{Ti}/\text{Au} = 60/20 \text{ nm}$ であり、TES パターニング加工済みだが超伝導転移が確認できなかった基板である。この基板を表??の条件でフォトリソグラフィーを行った後、ICP 装置にてエッチングした。始めは ISO_1min レシピで SiNx 除去を行った。一度にエッチングするのではなく、15 分毎に取り出して時計回りに 90° 回転させ、エッチングムラを防ぐようにした。当初は 70min の加工を行う予定だったが、60min の加工終了後、光学顕微鏡による観察を行ったところ、想定より深く削れているように見えた。基板表面の色から、劣化や摩耗

により SiN_x や SiO_2 が無くなり Si が露出していると判断した。そこでレシピを TES_High_Speed に切り替え、 Si エッチングを行うことにした。125cycle(27min 43s) 行い、この時点で $400\mu\text{m}$ 以上掘れており、本来ならば基板が貫通してもおかしくない厚みだったが、光学顕微鏡観察では露出を確認できず貫通も見られなかった。また、台座から取り外したところ、基板の一部が崩壊していたり、レジストが明らかに焦げている等、大きなダメージがあった。基板をアセトンで 3min 洗浄したが、図 6.8 のように裏面のレジストは焦げ付いたままだった。

表 6.3: TMU445 フォトリソ条件と加工条件。

裏面使用レジスト	S1830G
ベーク	3 min
クーリング	9 min
露光時間	3 s
現像時間	9 min
SiN_x エッチング条件	ICP-RIE 装置 (ISO_ 1min), 60min
SiO_2 エッチング条件	BHF, 30min
Si エッチング条件	ICP-RIE 装置 (TES_ High_ Speed), 110 cycle

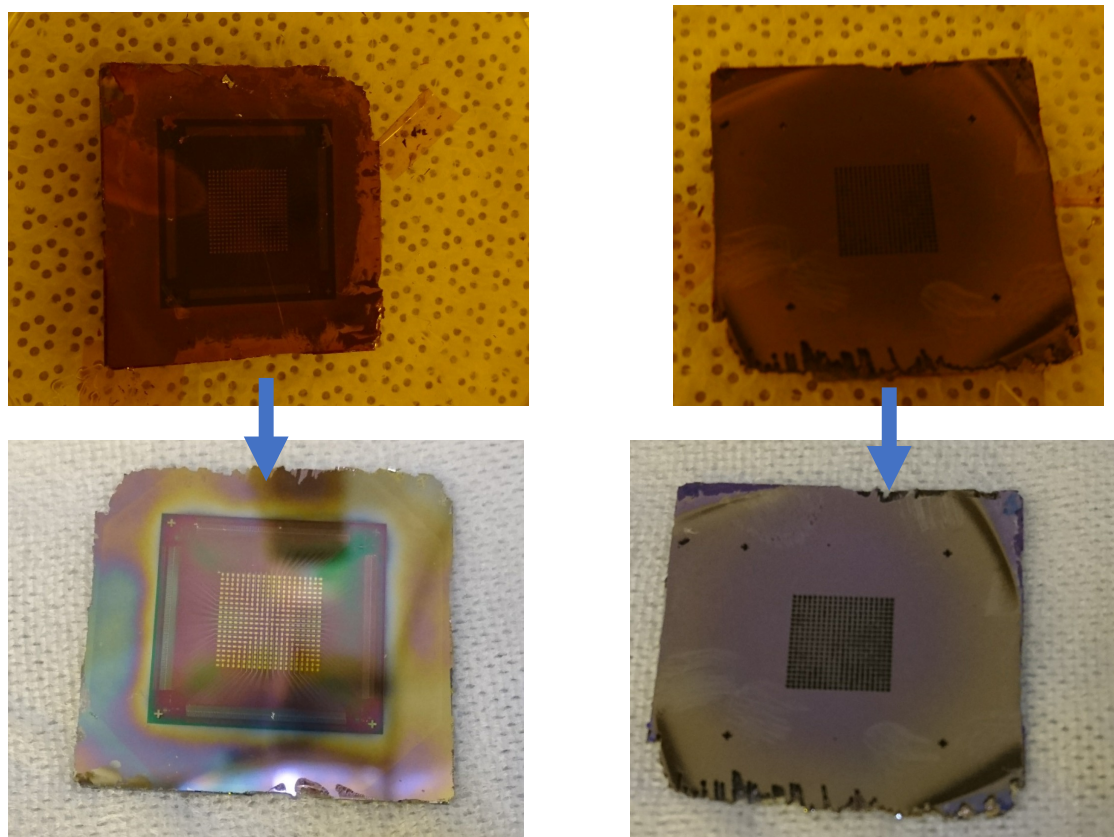


図 6.8: TMU445 のプロセス後の基板洗浄前後の様子。

6.4.2 TMU444 を用いたテスト加工

次に TMU444 を用いたテスト加工を行った。TMU444 は $\text{Ti}/\text{Au} = 50/100 \text{ nm}$ であり、TMU445 と同じくパターニング済みだが未転移の基板である。前回の結果を踏まえ、TMU444 は表 6.3 と同じフォ

トリソ条件にし、はじめから Si エッチングを行うことにした。これは基板裏面が Si のみであると考えたためである。加工の結果、ICP 装置でレシピ TES_High_Speed を 276cycle(61min11s) 行ったところで下部配線の露出を確認することができた。エッチング後の基板全体像を図 6.9 に示す。そして状態観察と基板厚み検証とを行った。

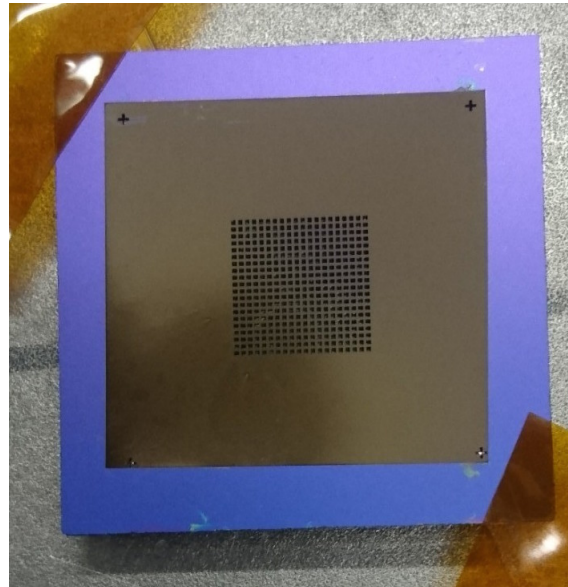


図 6.9: エッチング後の TMU444。

エッチング後の状態観察

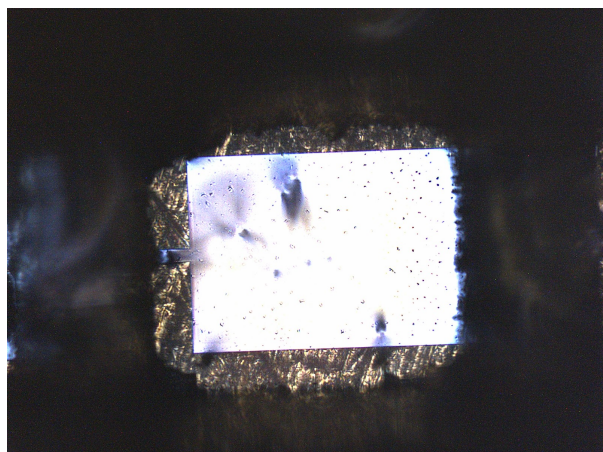
光学顕微鏡で基板裏側からメンブレン箇所を観察し、掘れ方の状態を調べた。この時、メンブレンの破れを懸念してアルミ台座に乗せたままで観察を行った。ほぼ完全に露出が確認しているピクセルが最も多く、全体の約 8 割を占めていた。しかし、図 6.10a のように下部配線の一部がパターンからはみ出し隠れていたり、図 6.10b のように配線に黒い影が見えるピクセルが大半だった。前者の原因はアライメントが正確に合っていないためだと考えられる。後者は、基板表面側の SiO_2 により応力がかかっている可能性がある。また、下部配線上に小さな粒模様があるが、これは配線成膜時にできたものだと思うられる。

残りのピクセルは、図 6.11 のように完全に露出しきれていないか、図 ?? のように下部配線が未露出のものだった。このようなピクセルが発生した原因としては、エッチングの際に途中で基板を回転させずに続けたため、エッチングムラができてしまったと思われる。図 6.11 にも下部配線に黒い模様が見えるが、黒い輪の様な模様は TES や配線等による応力がかかっているためと考えられる。その内側にある少し大きな点はブラックシリコン (B-Si) であると思われる。B-Si の原因は様々あるが、その一つとして、被エッチング部分にあるコンタミネーションやパーティクルがマスクのような働きをしてしまいその下がエッチングされずに残ってしまうために発生することが挙げられる。

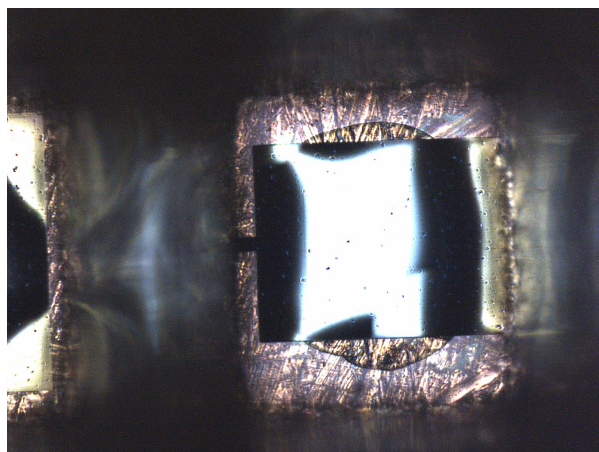
これらの結果から、ICP 装置を用いたエッチングでは途中で基板を回転させないと加工に偏りができてしまうこと、加工後には B-Si の発生やメンブレンへの応力によるたわみがある可能性がわかった。

基板厚みの検証

光学顕微鏡で深さ方向の距離を測定したところ、基板表面から約 $660\mu\text{m}$ までエッチングされていることが確認できた。しかし、光学顕微鏡の深さ測定は、あるフォーカスでの距離を基準とし、そこから



(a) 下部配線が一部隠れてしまっている。また、下部配線上に B-Si のがあるように見える。



(b) 下部配線に黒い影がかかっている。

図 6.10: ほぼ完全にエッチングできた TMU444 のメンブレン。

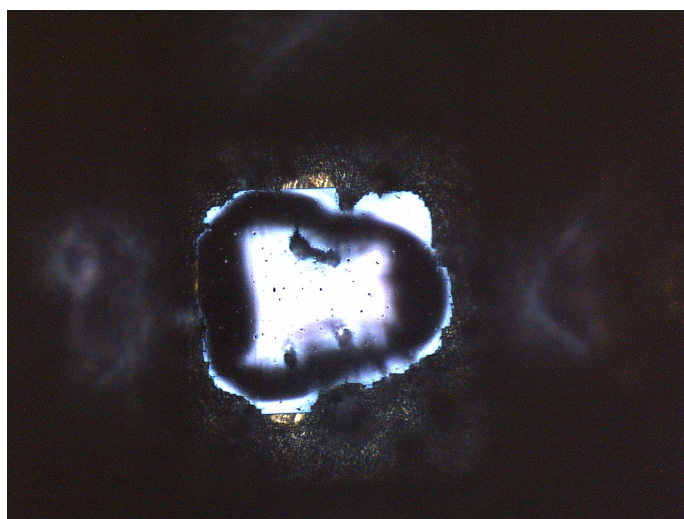


図 6.11: 一部がエッチングしきれていない TMU444 のメンブレン。

どれだけフォーカスをずらしたかで測定しているため、測定者によって誤差が大きくなってしまふ。そこで触診式プロファイリングシステム Dektak によるメンブレン厚の測定を試みた。ピクセルパターンの対角線上に角 2 箇所と中央 1 箇所を測定した。結果を図 6.13 に示す。光学顕微鏡の結果と大きく異なり端は約 $250\mu\text{m}$ 、中央は約 $125\mu\text{m}$ の深さとなった。しかし、グラフが不自然に平らになっていたり、メンブレン幅が設計 ($300\mu\text{m}$ または $350\mu\text{m}$) より明らかに狭くなっている。これは Dektak の針がうまく表面を謎れていないことを意味していると考えられる。

Dektak の結果に疑問が残ったため、さらに KEYENCE 製 3D レーザ顕微鏡「VK-9710」(図 6.14) を用いた可視光と UV 光による測定も行った。測定箇所及び結果を図 6.15 に示す。図 6.13 とほぼ同じ箇所を測定したが、どのメンブレンも $650 \sim 700\mu\text{m}$ 程の厚みがあることがわかった。図中のメンブレン内のノイズのような部分は B-Si か、もしくは削りきれていない Si であると思われる。これらは、基板中心に比べて外側の方に発生がよく見られた。

最後に、マイクロメーターで基板厚みを測定したが、これも結果は約 $650\mu\text{m}$ となった。これまでの結果と併せ、TMU444 及び TMU445 は図 6.16 のように、基板の片面のみ SiN_x と SiO_2 があり裏面は特別な加工を施していない構造をしていると推測される。ここで、図中の基板最下層にある SiO_2 は自然酸化膜であることに注意されたい。本来は図 6.1 のような両面ミラー構造のウエハを用いているはずだが、

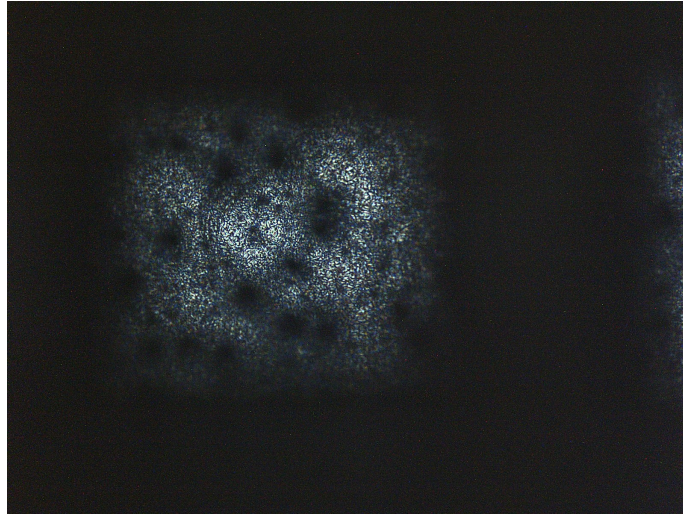


図 6.12: 下部配線が未露出な TMU444 のメンブレン。

産総研での基板配線製作時に誤った基板と取り違えてしまった可能性がある。製作時期から、TMU459 も同様の構造をしていると考えられる。

6.4.3 基板厚みの相違

TMU444 による検証により、TMU459 は基板厚さが $650\mu\text{m}$ であることがわかった。この結果を受け、CMP 加工を導入してからの基板を調べ直した。 $650\mu\text{m}$ 基板と $380\mu\text{m}$ 基板は並べると明らかに厚みに違いがあるので、区別は容易である。結果、導入最初期に製作された基板 (TMU444、445、459、474) のみ $650\mu\text{m}$ 基板が用いられ、他の CMP 基板は $380\mu\text{m}$ 基板であることがわかった。

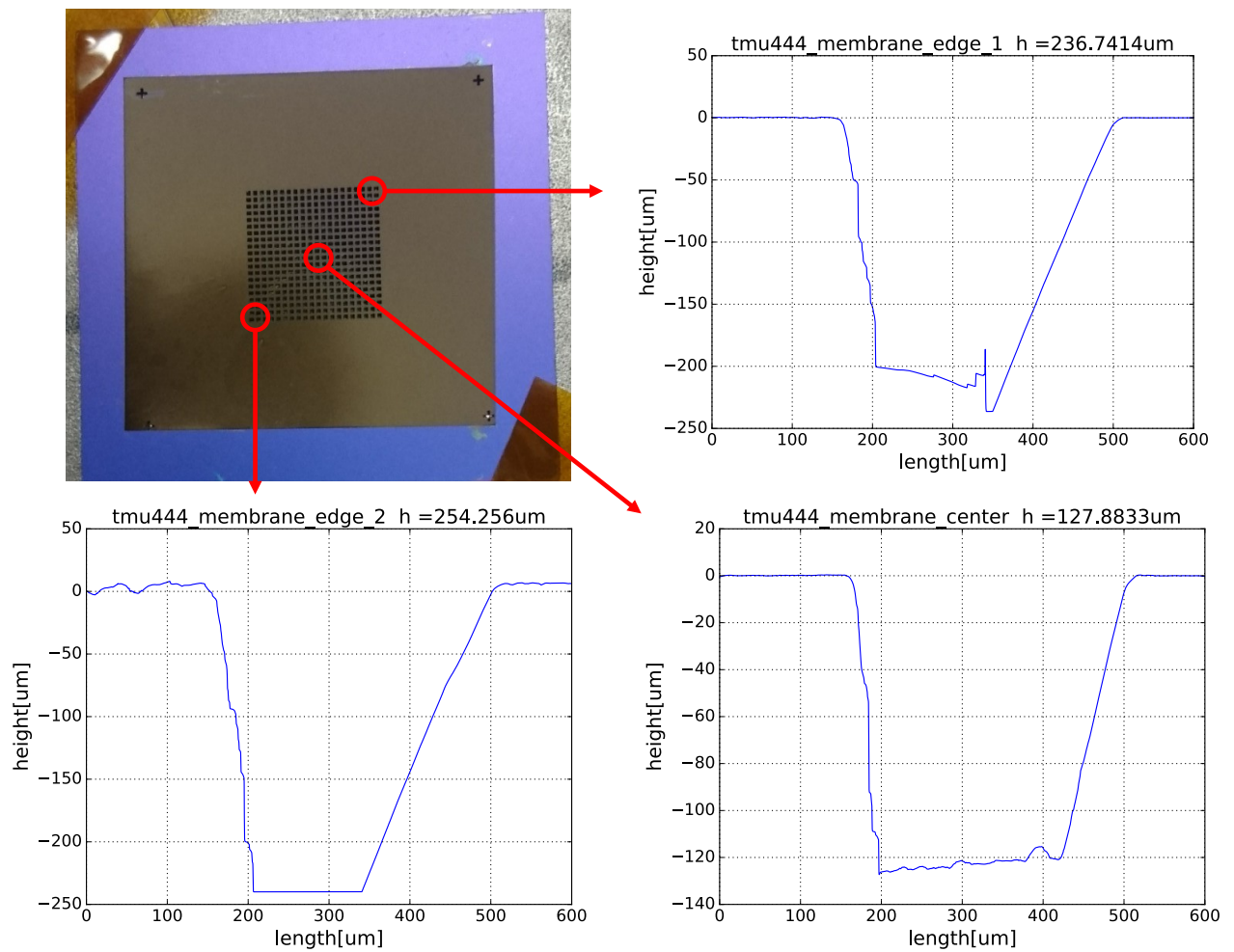


図 6.13: TMU444 の Dektak 測定位置と結果。



図 6.14: 3D レーザー顕微鏡 VK-9710。

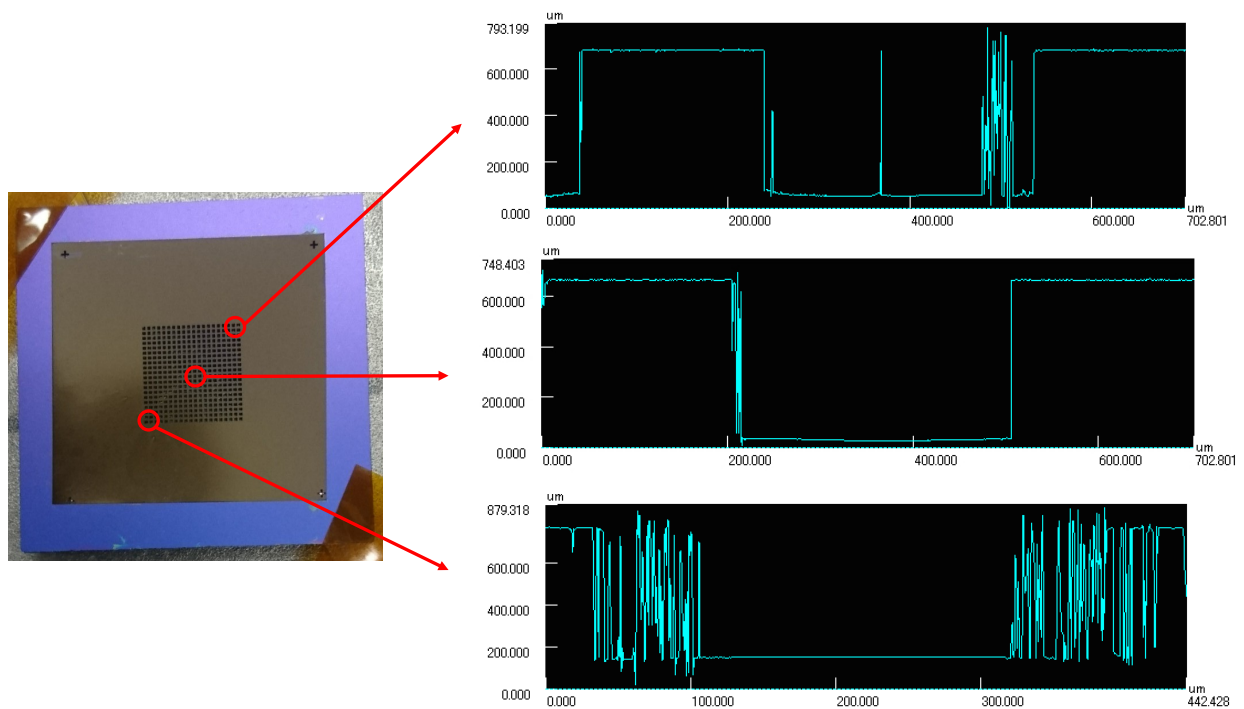


図 6.15: TMU444 のレーザ顕微鏡観察結果。

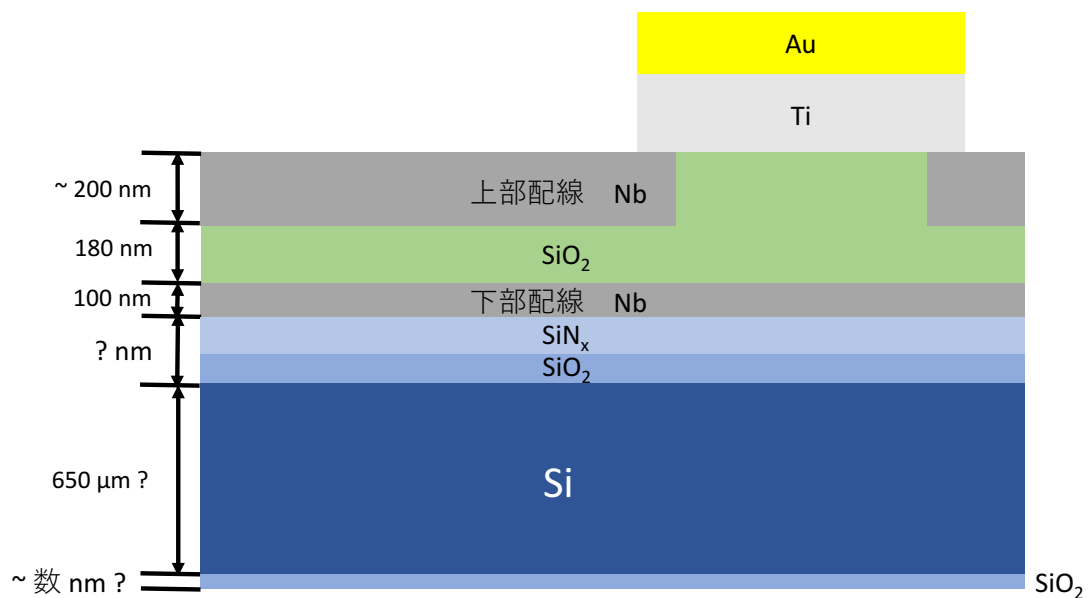


図 6.16: 実験結果から予想される TMU444、TMU445 及び TMU459 の基板断面図。

6.5 380 μ m 基板のメンブレン加工に向けた条件出し

TMU459 は 650 μ m 基板だったが、これら以降の基板は 380 μ m 基板なので、TMU459 の為に個別に条件出しを行う意義が薄いと考えた。なので我々は TMU459 のメンブレン加工を断念し、380 μ m 基盤を用いて再度メンブレン加工プロセス構築を行うことにした。

6.5.1 プリベーク・露光条件出し

実験再開当初、650 μ m 基板を用いていたときと同じく S1830G の塗布条件をプリベーク 3min、露光時間を 12s の条件でフォトリソグラフィーを行ったところ、現像後に発泡の痕が確認できた (図 6.17)。発泡の原因としては、プリベーク不足によりレジストが硬化しきらず、露光時に発生した N_2 がレジスト内の残留溶媒によりトラップされ、レジスト外への放出がうまく行かずに発泡した可能性がある。あるいは、露光時間が長すぎたために N_2 が過剰に発生してしまったことも考えられる。

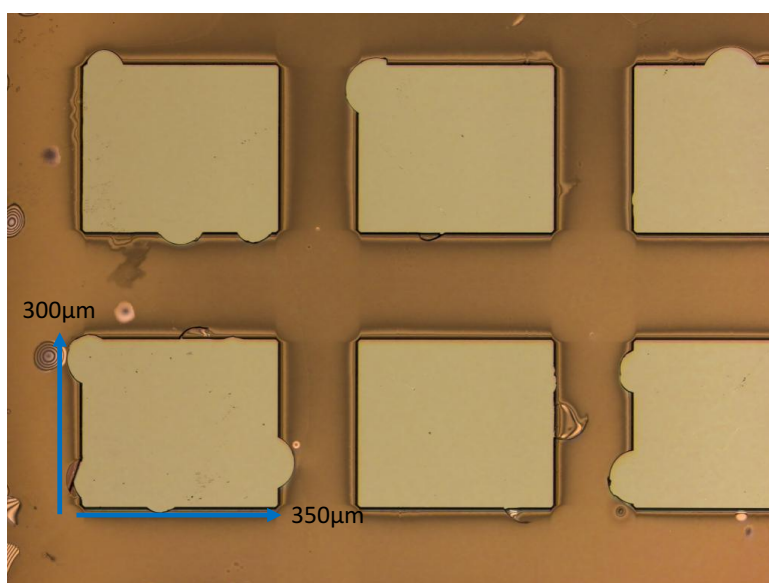


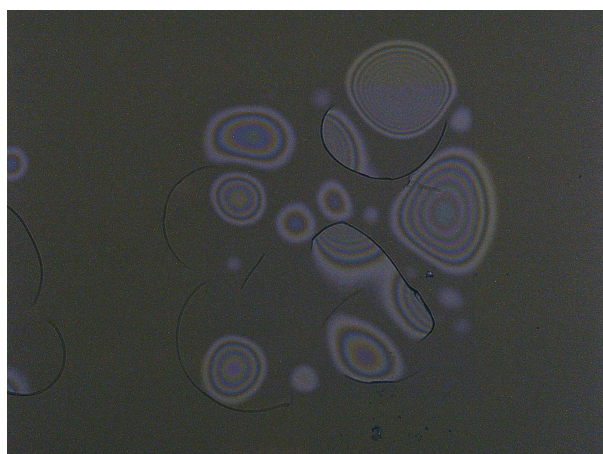
図 6.17: 露光 12s、現像後の CMP17。パターンに丸い痕が残っている。

そこで、ベーク時間を 3min / 6min / 15min / 18min、露光時間を 1 ~ 12 s の間で変化させ、適切な組み合わせを探した。クーリング時間は 9min としたが、露光するまでに更に時間が経っているため実際は概ね 15min 以上となっている。現像前に光学顕微鏡で露光したパターンを観察することで発泡の有無を確認し、発泡がなければ現像を行うことにした。基板は CMP17、CMP20 及び wafer12 を用いた。CMP17 と CMP20 はスパッタ成膜後発泡問題の際に CMP 加工前の状態で成膜した場合の様子を確認した基板であり、Ti/Au = 100/20 μ m が製膜されパターンニングも行っている。wafer12 は傾斜付き積層配線であり CMP 加工及び TES 成膜は行っていない。

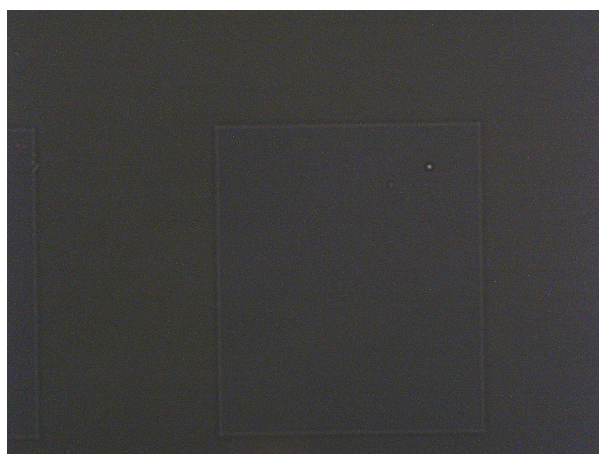
S1830G の塗布および露光条件出しの結果を表 6.4 にまとめる。これより、プリベークを 3 min、露光を 3s 以内にするすることで、発泡することなく露光ができることがわかった。5s 露光した場合と 3s の場合の比較を図 6.18 に示す。なお、条件出し後に 650 μ 基板である TMU443 を用いて再度プリベーク 3min、露光時間を 12s の条件でフォトリソグラフィーを行ったところ、発泡は確認できなかった。これにより、基板厚さや露光面の材質が露光条件に影響していると考えられる。

表 6.4: フトリソグラフィー条件出し結果まとめ。

ベーク時間 (min)	露光時間 (s)	発泡の有無
3	12	有
3	10	有
3	8	有
3	5	有
3	3	無
3	2	無
3	1	無
6	10	有
6	5	有
15	5	有
18	5	有



(a) 5s 露光、現像前の状態。



(b) 3s 露光、現像前の状態。

図 6.18: 露光時間を変えた場合の基板の様子。

6.5.2 CMP20 を用いたテスト加工

フォトリソグラフィーの条件が出揃ったので、エッチング工程に移る。最初は CMP20 基板を用いた加工を行った。まず SiN_x 膜を除去するため、ISO_1min レシピで 70min 加工 (15min 毎に基板を 90° 回転) した。実験当初、この手順により SiO₂ も除去されていたと誤認していたため、SiN_x エッチングの後に Si エッチングを続けて行った。50cycle(約 10min 30s) 終了後の光学顕微鏡観察で Si が露出していないことに気づき、SiO₂ のエッチングに移行した。なお、Si がエッチングされている時は特徴的な模様 (例: 図 6.12) が見えるので、判断が容易である。SiO₂ エッチング後に光学顕微鏡観察を行ったところ、大半のメンブレンパターンに白いモヤのような模様が確認された (図 6.19a)。最初はエッチング不足と考えたが、BHF のエッチングレートと加工時間から可能性は低いと思われ、他の理由も考え辛いためこの基板特有の問題の可能性はある。また、基板端の数個だけだが干渉模様に見えるピクセルも存在した (図 6.19b)。



(a) 白くモヤついたピクセル。



(b) 干渉模様に見えるピクセル。

図 6.19: SiO₂ エッチング後の CMP20。

観察により SiO₂ エッチングができているとみられたので、ICP 装置による Si エッチングに移った。レシピ TES_High_Speed を 125cycle(約 26min 30s) 行ったところで下部配線の露出を確認できた。そこで、光学顕微鏡による観察で全体を確認し (図 6.20)、メンブレンの状態別に分布を分けた (図 6.21)。図 ?? の内、緑で表されている領域は下部配線の露出は比較的大きいメンブレンであり、下部配線が一部しか露出しなかったものは赤で表されている。また、青い箇所は全く下部配線が見えないメンブレンであり、黄色は加工後の洗浄などでメンブレンが破れてしまった箇所である。それぞれの状態の割合を表 ?? に示す。

表 6.5: CMP20 メンブレン状態分布まとめ。

8 割以上露出 (緑)	77 %
一部露出 (赤)	7 %
未露出 (青)	14 %
破損 (黄)	2 %

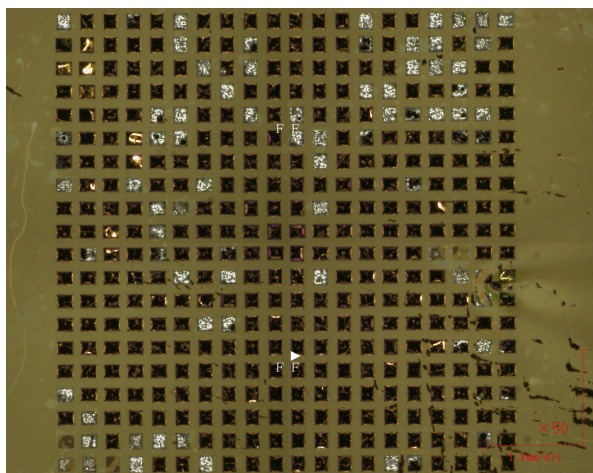


図 6.20: CMP20 の全体像。

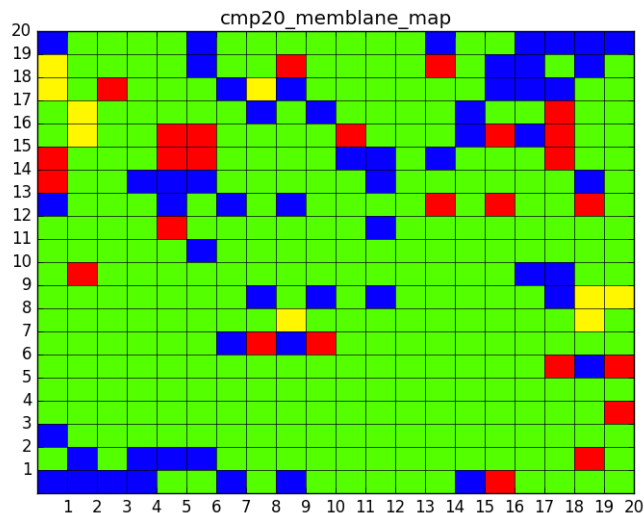


図 6.21: CMP20 のメンブレン状態分布。

下部配線が8割以上見えたメンブレンでは、下部配線上に B-Si が確認でき、メンブレンの縁が荒れている箇所が多かった(図 6.22)。また、前回同様にエッチング領域と下部配線がずれているピクセルも少なくなかった。今回の B-Si の発生原因としては、図 6.19a の白いモヤが残った SiO_2 であり、これが下層の Si のエッチングを妨げたと考えられる。ほぼ下部配線が完全に露出しているメンブレンは前回より多くなっていたが、図 6.23 のように隣り合うピクセルでエッチング量が異なるピクセルや、図 6.24 のように $100\mu\text{m}$ 程度しかエッチングされていないピクセルなど、エッチングレートの大きな差があることがわかった。後者に関しては、位置が図 6.19b と一致していることから、 SiO_2 膜のエッチング不足であると思われる。本来は全ピクセルが完全露出まですべきだが、レジストの硬化を考慮してこの時点でエッチングを終了した。

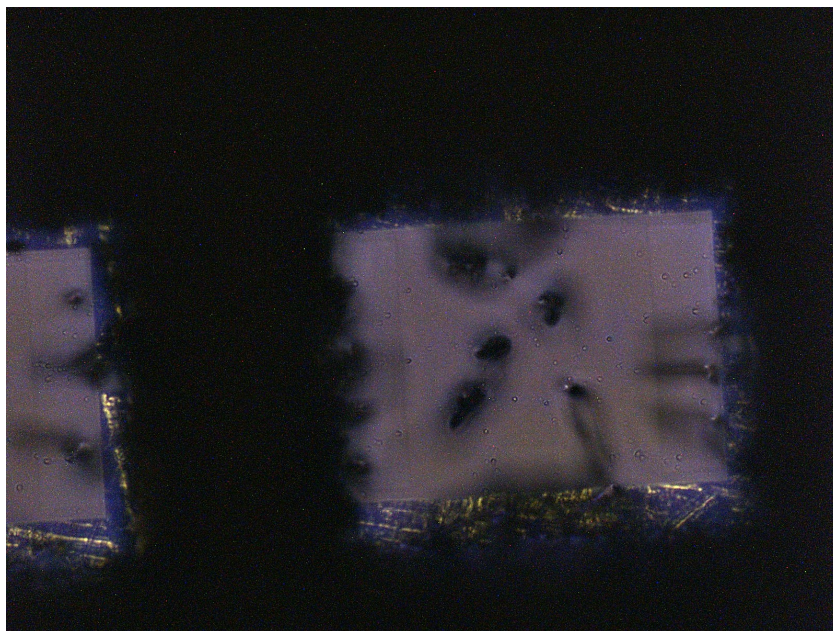


図 6.22: 下部配線が8割程度露出した CMP20 のメンブレン。

全工程終了後、アルミ台座から基板を外す際にメンブレンを破かなように丁寧に外す必要がある。具体的には、台座ごとアセトンに浸して外す方法(詳しくは大石修論 P126 参照)や、台座を斜めにしてアセトンを流しながらピンセットでずらす方法がある。今回は後者の方法で基板を外し、アセトン洗浄を行い基板両面のレジストを落とした。洗浄は通常ディッパーに取り付けた基板を左右に揺らして行うが、



図 6.23: 一部分のみ下部配線が露出したメンブレン。

メンブレン加工後はなるべく動かさないようにする。洗浄は 3min 行ったが、裏面のレジストが焦げ付いてしまい落ちなかった。

洗浄後に TES 側から光学顕微鏡による観察を行った。下部配線の露出が比較的大きい基板では、メンブレンの縁の凹凸が目立って見えた (図 6.25a)。また、ピクセル全体がやや膨らんでいたが、これは上部配線の上にある SiO_2 による圧縮応力ではないかと思われるが、テスト用の基板固有の問題であるため、本番では問題ないと思われる。一部だけ下部配線が露出したピクセルでは、その部分だけがシワのような模様になっていた (図 6.25b)。下部配線が全く露出しなかったピクセルは変化がなかった。

CMP20 に行った加工を表 6.6 にまとめる。今回のメンブレン加工により、プロセスの大まかな流れができた。しかし、 SiO_2 エッチングで白い模様が残ってしまう、Si エッチングが荒くムラがある、裏面のレジストが硬化して落ちないといった問題点があった。白い模様は原因がわからないため別基板で再現するか確認しする必要がある。また、Si エッチングに関しては現像時間が足りずパターニングがうまく行っていないことや、Si のエッチング不足であることが考えられる。レジストの硬化は、塗布量を増やしたり加工後のアセトン洗浄の時間を長くすることで解決すると思われる。

表 6.6: CMP20 に行ったメンブレン加工

工程 1	SiNx エッチング	70 min
工程 2	Si エッチング	50cycle
工程 3	SiO_2 エッチング	30min
工程 4	Si エッチング	125cycle

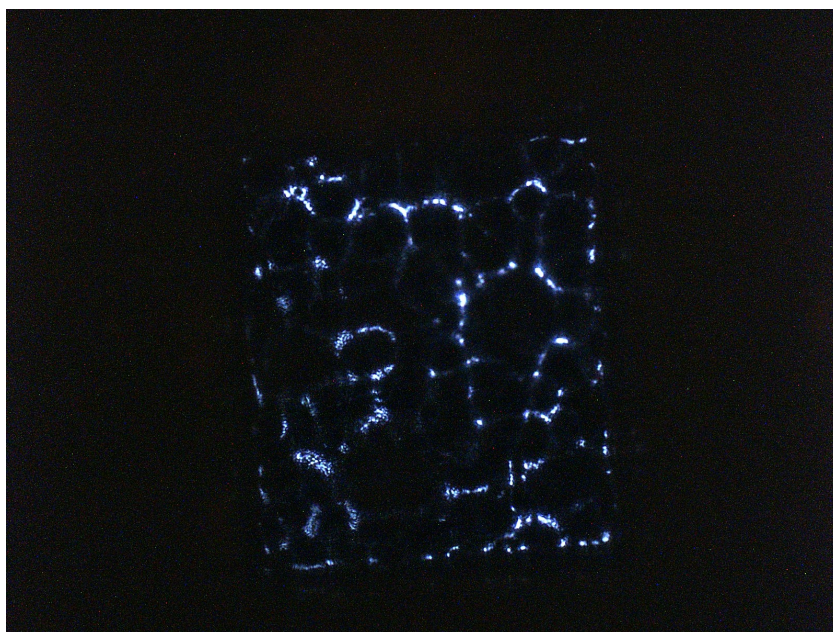
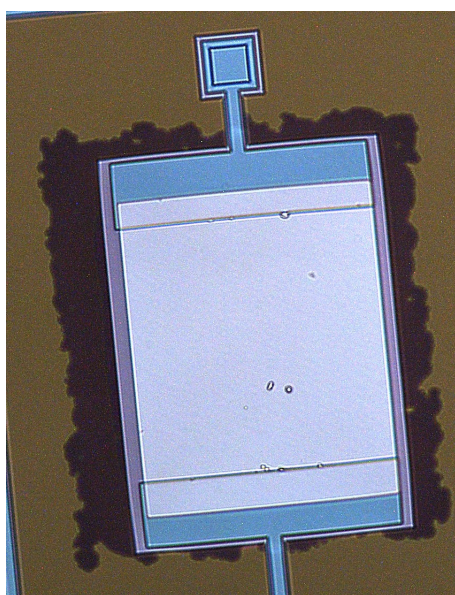
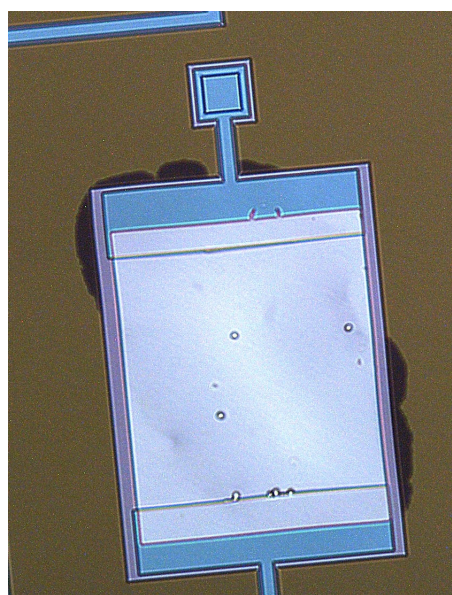


図 6.24: 100 μm 程度しか掘れていないピクセル。



(a) 下部配線が露出した CMP20 のピクセル。



(b) 一部分のみ下部配線が露出したピクセル。

図 6.25: メンブレン加工後の CMP20 のピクセル。

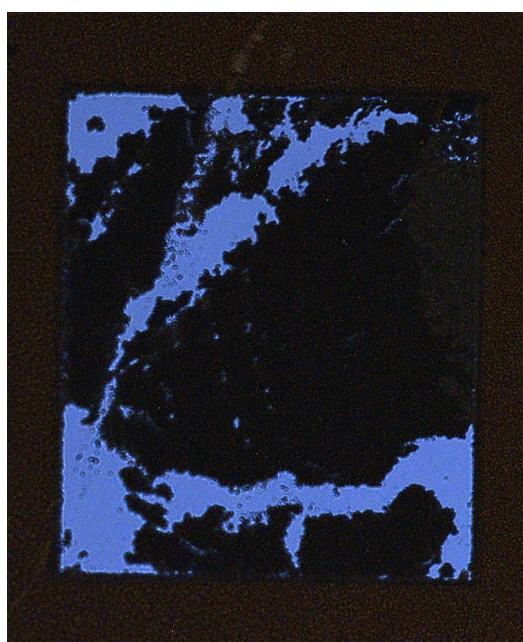
6.5.3 CMP17 を用いたテスト加工

プロセスの改善のために、表 6.7 にあるような変更を計画してメンブレン加工のテストを行った。基板は CMP20 と同じく CMP 未研磨で同じ TES 膜厚で製膜されている CMP17 を用いた。

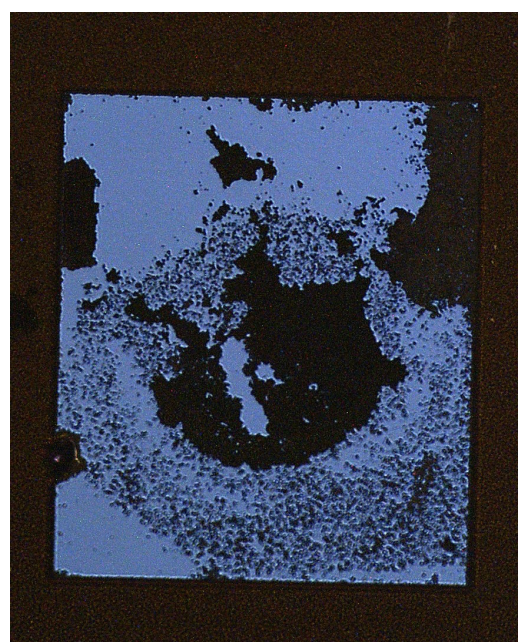
表 6.7: CMP20 との加工条件変更計画

工程名	変更前	変更後
現像時間	9min	→ 15min
SiNx エッチング	70min	→ 45min
Si エッチング	125cycle	→ ~ 150cycle

SiNx と SiO₂ のエッチングでは特に問題は発生しなかったが、Si エッチングを 100 cycle(約 20min) 行ったところで光学顕微鏡観察をしたところ、Si がエッチングされていないことがわかった。SiNx か SiO₂ のエッチング不足が考えられるが、SiNx は Si エッチングのレシピでも除去されるため、SiO₂ が残っていると判断した。そこで SiO₂ エッチングを再度 30 min 行った。するとピクセルが白く見える領域と黒く見える領域に別れた (図 6.26)。どちらかの領域がエッチングムラだと思われたため更に追加で 15min 行ったが変化した様子はなかった。dektak で測定したところ、図 6.27 のような結果となり、白い領域より黒い領域の方がエッチングされていることがわかった。更に追加で行うことも考えられたが、Si エッチングをすれば黒い領域が SiO₂ かどうかが判断できるため、工程を続行した。Si エッチングの結果、130cycle(約 27min) で下部配線が露出し、SiO₂ エッチング後の白黒模様は Si エッチングに影響しなかった。これは CMP20 の結果 (125cycle) とほぼ同じである。台座から基盤を外し、アセトン洗浄を 10min 行ったところ、裏面のレジストが乾燥した様に剥がれた。基板洗浄後の表面観察で、ピクセルに対するメンブレンの向きが正しいものと間違っている向きのものがあった (図 6.28)。間違っているメンブレンは基板対角線上にあるピクセルであり、はこれはパターニングの際に用いるマスクの設計ミスであると考えられる。

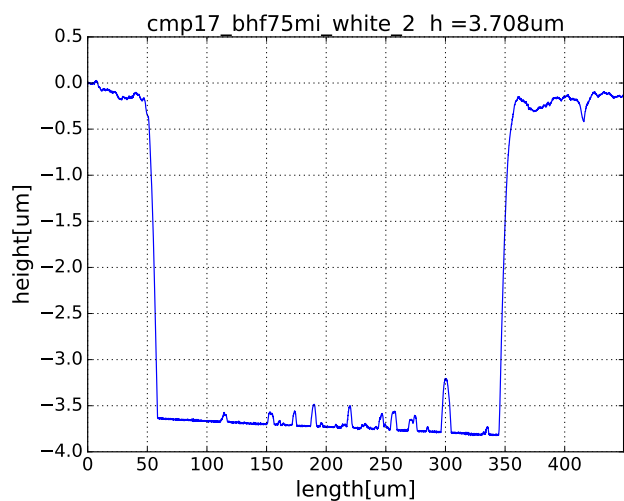


(a) 30min 加工。

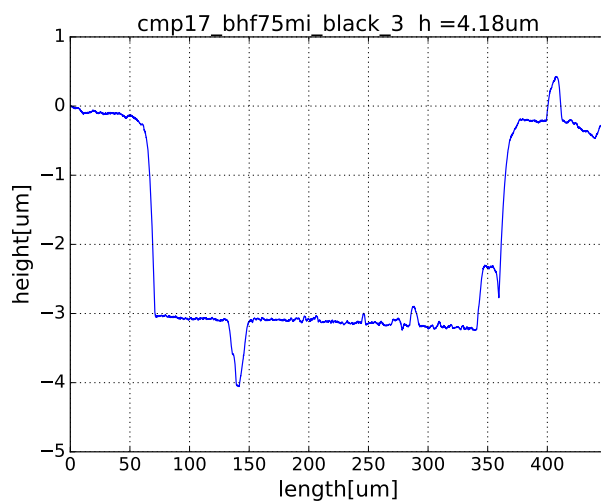


(b) 30 + 15 min 加工。

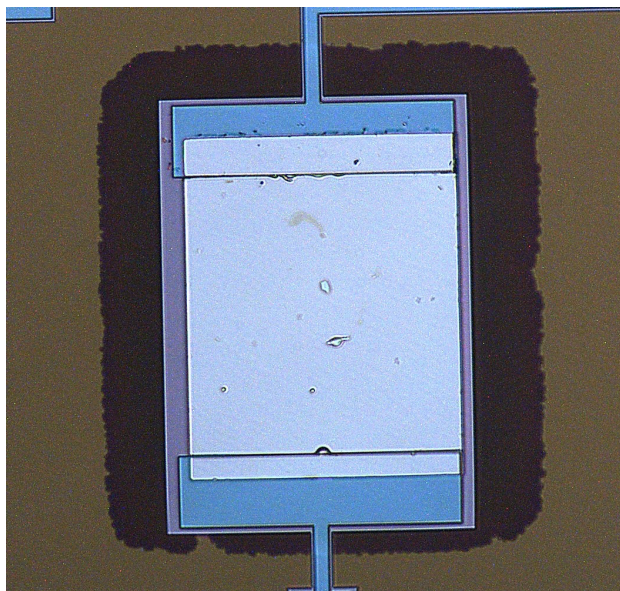
図 6.26: CMP17 SiO₂ エッチング 2 回目後の光学顕微鏡観察結果。



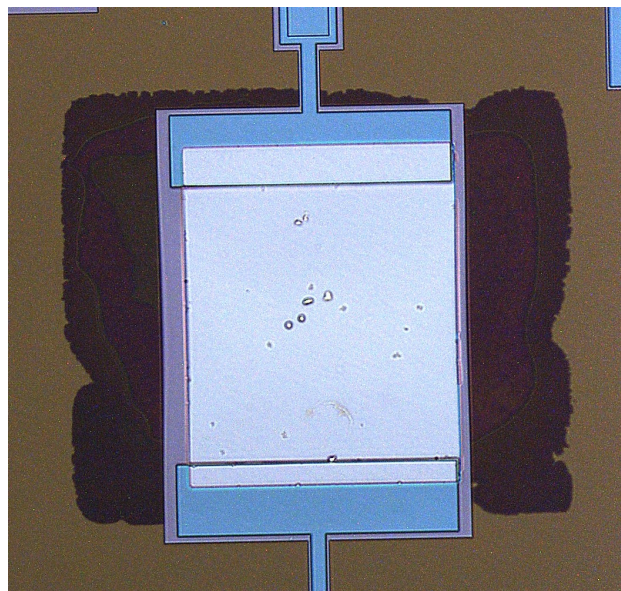
(a) 全体が白く見えるピクセル。



(b) 白と黒の模様になっているピクセル。

図 6.27: SiO₂ エッチング二回目後の Dektak 測定結果。

(a) 正しい向きのメンブレン。



(b) 間違った向きのメンブレン。

図 6.28: メンブレンとピクセルの向きの不一致。

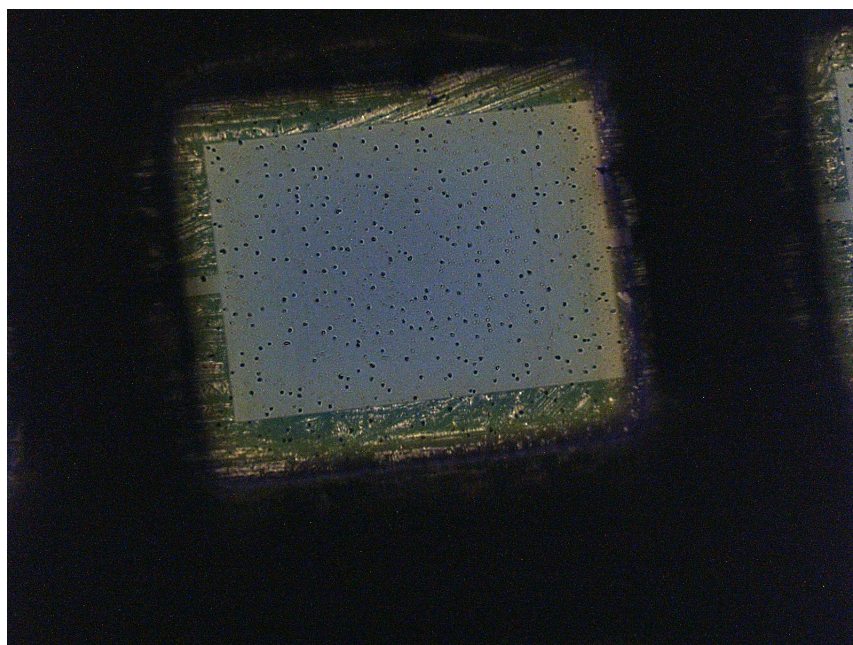


図 6.29: CMP17 のメンブレン。

CMP20 との比較

CMP20 と CMP17 の結果について、まず裏面の状態について比較する。

CMP20 と同様に光学顕微鏡にて全体及び状態観察を行った（図 6.30、6.31）。また、状態別の割合を表 6.8 に示す。これを図 6.21 及び 図 6.5 と比較すると、露出が大きいメンブレンが 77 % から 98.5 % と大幅に増えた。また、未露出のメンブレンは 14 % から 0 % となり、加工結果が大幅に改善ができたと言える。

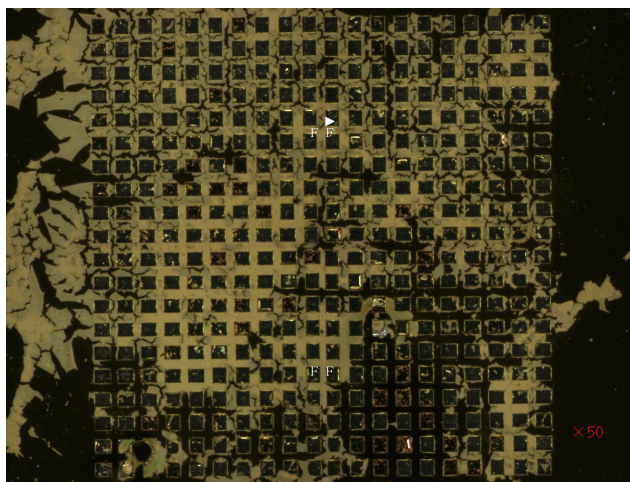


図 6.30: CMP17 の全体像。

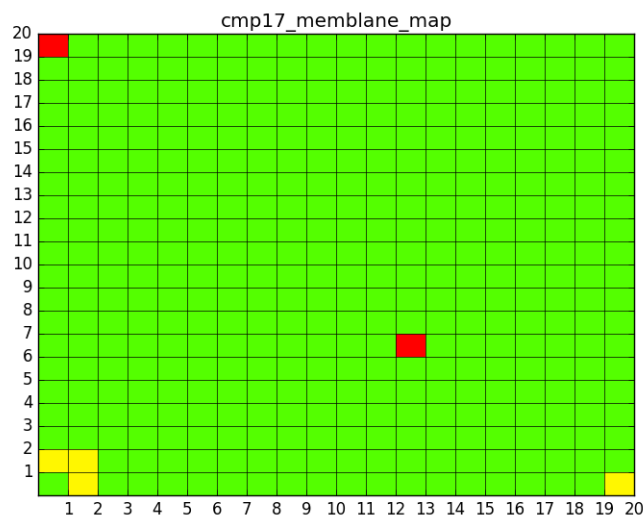


図 6.31: CMP17 のメンブレン状態分布。

表 6.8: CMP17 メンブレン状態分布まとめ。

8 割以上露出 (緑)	98.5 %
一部露出 (赤)	0.5 %
未露出 (青)	0 %
破損 (黄)	1.0 %

次に、メンブレンの状態について詳しく観察する。まず、図 6.22 と図 6.29 を比較する。CMP20 は B-Si の発生が目立っており未露出のピクセルもあった。一方で CMP17 は全体的に被エッチング領域が増え B-Si も少なく見えたが、下部配線の小さな粒模様も増えた。表面に関しては、図 6.25a と図 6.28a を比較すると、CMP20 が縁取りが汚く応力が働いているようにみえたが、CMP17 はこれらが改善されたと思われる。しかし TES 膜自体の汚れが目立つようになった。

CMP17 の加工結果より、次のことがわかった。まず、現像時間を 15min にすることでパターニングが改善され、メンブレン縁の凹凸が減りエッチング領域も広がった。また、 SiO_2 が一回で除去できなかったのは SiN_x エッチングが足りないと考えられるため、やはり 70min 近くまでの加工が必要だと思われる。そして Si エッチングは 130cycle 程度で下部配線が露出できることがわかった。これらを踏まえ、再度工程を見直してテスト加工を続けた。

6.6 CMP18-tip3 を用いたテスト加工

CMP18-tip3 とは、CMP 加工をした CMP18 基板をダイシングした際に残った切れ端のことであり、配線加工や TES 成膜は施されていない。表 6.9 の条件で加工を行ったところ、加工は問題なく進み、下部配線の Nb の露出が確認できた (図 6.32)。しかし光学顕微鏡観察では、B-Si の発生や応力のが働いて見えるようなシワが確認できた。これは ICP 装置の不調により基板が高温のチェンバー内に取り残されてしまったため、エッチングやメンブレンの変形に影響した可能性がある。

本実験によってメンブレン加工の条件が出揃った。

表 6.9: CMP18-tip3 に行ったメンブレン加工

SiNx エッチング	60 min
SiO ₂ エッチング	30min
Si エッチング	110cycle

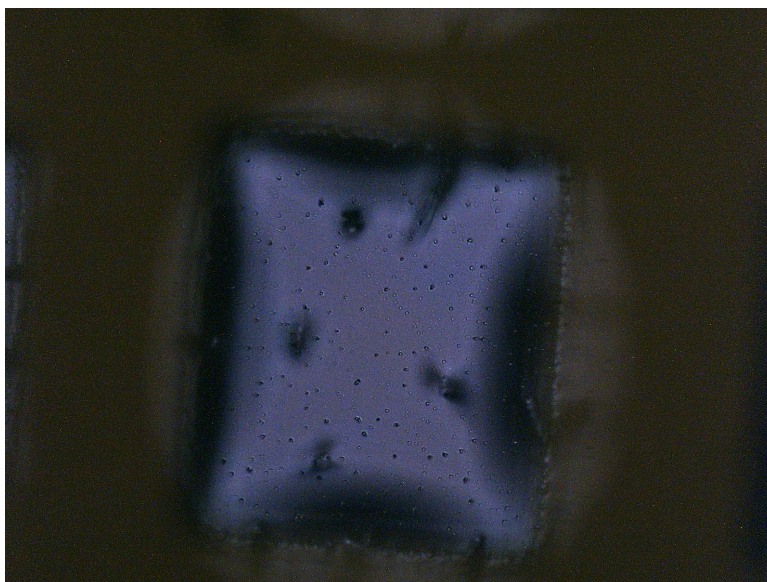


図 6.32: CMP18-tip3 のメンブレン。

6.7 まとめ

これまでの条件出しに用いた基板と行った加工を表 6.10、6.11、6.12 にまとめる。実験開始当初は CMP459 のメンブレン化を目標にテスト加工を行ったが、CMP444 を用いた検証によって我々が想定していた基板と異なることがわかった。これらは 2015 年に配線加工を行った基板であり、現在用いている基板は正しい基板であることから、TMU459 の加工を断念し現在の基板の仕様に合わせたメンブレンの加工プロセスを構築した。これを表 6.13 にまとめる。この条件を基に、CMP 加工を施した TES 成膜済みの基板での加工及びその性能評価に臨む。なお、Si エッチング条件に関しては一度に行う cycle 数によって合計時間が変わるのでこの限りではない。

表 6.10: メンブレン加工に用いた基板情報まとめ

基板名	Ti / Au [nm]	パターニング	備考
TMU445	60 / 20	○	Si 680 μm 基板
TMU444	50 / 100	○	Si 680 μm 基板
CMP17	100 / 20	○	CMP 未加工
CMP20	100 / 20	○	CMP 未加工
wafer12	—	—	傾斜付き積層配線
CMP18-chip	—	—	基板切れ端

表 6.11: 条件出し基板結果まとめ 1。

基板名	TMU445	TMU444
工程 1	SiNx エッチング 70 min	Si エッチング 256cycle
工程 2	Si エッチング 125cycle	—
配線の露出	未露出	露出

表 6.12: 条件出し基板結果まとめ 2。

基板名	CMP20	CMP17	CMP18-chip3
工程 1	SiNx エッチング 60 min	SiNx エッチング 45 min	SiNx エッチング 60 min
工程 2	Si エッチング 50cycle	SiO ₂ エッチング 30min	SiO ₂ エッチング 30min
工程 3	SiO ₂ エッチング 30min	Si エッチング 100cycle	Si エッチング 110cycle
工程 4	Si エッチング 125cycle	SiO ₂ エッチング 45min	—
工程 5	—	Si エッチング 130cycle	—
配線の露出	露出	露出	露出

表 6.13: メンブレン加工プロセスまとめ。

プロセス名	条件
裏面レジスト塗布	S1830G, ベーク 3min, クーリング 9min
フォトリソグラフィー	露光 3 s, 現像 9 min
SiNx エッチング	ICP-RIE 装置 (ISO_ 1min) 60min
SiO ₂ エッチング	BHF 30min
Si エッチング	ICP-RIE 装置 (TES_ High_ Speed) 110 cycle

第7章 まとめと今後

まとめ

私は、DIOS 衛星による中高温銀河間物質の検出に向けた TES 型 X 線マイクロカロリメータの開発を行った。DIOS 衛星では 1cm^2 の有効面積に $500\mu\text{m}$ 角のピクセルで 20×20 素子以上の要求があり、分解能の要求も $\Delta E = 2\text{eV}$ が必要とされている。先行研究では、積層配線を採用することによって多素子化や配線ストロークの軽減、配線ループによる自己インダクタンスの抑制を図り、要求を満たす素子の開発を行ってきた。しかしこれまでの積層配線素子は、配線と TES とのコンタクト不良や基板の粗さによって超伝導転移が確認できなかった。そして基板の粗さとコンタクトの両方を改善する CMP 加工を採用したデザインに変更し、更に TES 製膜時の逆スパッタ条件を抑えたところ、 $\text{Ti} / \text{Au} = 100\text{nm} / 20\text{nm}$ で $T_c=360\text{mK}$ の TMU459 素子が完成した。

そこで私は、素子の環境構築として、室温系での性能評価であるマイクロプローバーを用いた抵抗測定を行い、歩留まり及び理論値との比較を行った。TMU459 では歩留まり 100% を達成し、理論値とのズレや抵抗値のばらつきが大きいことを確認できた。また、極低温下での性能評価として行われている無冷媒希釈冷凍機による R-T 測定において、CRYOPHY と Al 超伝導磁気シールドを用いて外部磁場を遮蔽を行った。磁気遮蔽前後の実験結果を比較すると、遮蔽後は最低到達温度が上がり、転移温度が下がることがわかった。

一方、TMU459 の X 線照射実験を行うべく、吸収体の製作とメンブレン加工プロセスの構築を行った。吸収体の製作では、検出効率と分解能の兼ね合いから厚さの見積もりも行った。分解能を 2eV に保ちながら 5keV に対する検出効率を 80% 以上に保つには $2\mu\text{m}$ 程度の厚さが適当であるとわかった。吸収体の加工前後の R-T 測定の比較では、 $\sim 360\text{mK}$ の転移温度が $280 \sim 290\text{mK}$ となり、 70mK ほど転移温度が下がった。メンブレン加工プロセスの構築では、条件出しの際に TMU459 の基板厚さが $650\mu\text{m}$ あることがわかった。これは想定していた基板とは異なり、ウエハの情報も不明なため、TMU459 の加工を断念した。そして本来の基板である両面ミラー加工の $380\mu\text{m}$ 基板によるメンブレン加工プロセスの構築を行った。その結果、レジスト S1830G を 3s で露光し、 SiNx を ICP-RIE 装置を用いた SF_6 によるドライエッチングで 60min、 SiO_2 をバッファードフッ酸 (BHF) によるウェットエッチングで 30min、Si を ICP-RIE 装置によるボッシュプロセスを用いた加工で約 23min 30s 行えば良いということがわかった。

今後

現在は CRYOPHY のみを用いて R-T 測定を行っているが、転移温度が安定している基板を用いて磁気シールドと転移温度の変化の再現性を確認する必要がある。転移温度が 150mK 付近に調整されたパターンニング済みの CMP 基板を用いた吸収体及びメンブレンの加工を行い、R-T 測定によって特性の変化を見る。そして X 線照射試験によるエネルギー分解能測定を行い、吸収体などの更なる見積もりが必要である。

参考文献

- [1] K. D. Irwin and G. C. Hilton, 2005 Topics in Appl. Phys. 99, 63
- [2] Fleischmann, L. et al., 2009, J. P. Conf., 150
- [3] Kelley, R. L. et al., 2007, PASJ, 59, 77
- [4] D. Moore et al., 2011, LTD14
- [5] S. J. Smith et al., 2011, LTD14
- [6] K. C. Suetal., 2008 CS MANTECH Conference
- [7] John E. Sadleir et al., 2011, PhysRevB.84.184502
- [8] R.G.Mints et al., 1998, PhysRevB.57.10318
- [9] G.Palasantaz, 1999, Solid State Commun. 112,97-100
- [10] J.M.Graybeal et al., 1984, PhysRevB.29.4167
- [11] A.M.Finkel'shtein, 1986, JETP Lett., Vol 45, No.1
- [12] D.A.Bennett, R.D.Horansky, D.R.Schmidt, A.S.Hoover, R.Winkler et al., 2012, Rev. Sci. Instrum. 83, 093113
- [13] K. Yoshikawa et al., 2004 PASJ, Vol. 56, pp. 939-957
- [14] H. Akamatsu et al., 2009 AIP Conf. Proc. 1185, 195
- [15] Hitomi Collaboration, 2016 Nature, 535, 117-121
- [16] European Space Agency 「ATHENA assessment study report」
- [17] Simon Bandler 「NASA Contributions to the X-IFU」 (2016)
- [18] R. E. MOULDt AND D. E. MAPOTHER, Effect of Precipitation Hardening on the Superconducting Properties of Aluminum, 1961
- [19] Joel N Ullon and Douglas A Bennett, 2015 Supercond. Sci. Technol, 28
- [20] S. Oishi et al., 2011, LTD14
- [21] T. Ohashi et al., 2010 SPIE J. 7732, 77321S
- [22] T. Ohashi, et al., 2014 SPIE, 9144, 91442Q
- [23] S. Yamada et al., 2014 J Low Temp Phys, 176, 314
- [24] Y. Ezoe et al., 2009 AIP Conf. Proc.1185, 60

-
- [25] Y. Ezoe et al., 2011 IEEE Trans. Appl. Supercond. 21, 246
 - [26] Y. Ezoe et al., 2014 IEEE, 6, 1
 - [27] 江副 祐一郎, 2014, 超電導 Web21
 - [28] Y. Ezoe et al., 2015 IEEE Trans. Appl. Supercond, 25, 2100805
 - [29] 関東化学株式会社, 2006, 公開特許公報, P2006-291341A
 - [30] 加藤 勝, 2004, 金属エッチング液
 - [31] 萩原 利士成, 2007, 修士論文, 東京大学
 - [32] 吉武 宏, 2009, 修士論文, 東京大学
 - [33] 大石 詩穂子, 2012, 修士論文, 首都大学東京
 - [34] 榎島 陽介, 2013, 修士論文, 首都大学東京
 - [35] 飯島 律子, 2014, 修士論文, 首都大学東京
 - [36] 山口 静哉, 2015, 修士論文, 首都大学東京
 - [37] 林 佑, 2015, 修士論文, 東京大学
 - [38] 桑原 啓介, 2016, 修士論文, 首都大学東京
 - [39] 小泉 祥人, 2015 卒業論文, 首都大学東京
 - [40] 黒丸 厳静, 2016, 修士論文, 首都大学東京
 - [41] 鈴木 翔太, 2016, 修士論文, 首都大学東京
 - [42] C. Kittel, 「固体物理学入門 上」, 丸善株式会社
 - [43] 近藤 英一, 「機械・材料系のためのマイクロ・ナノ加工の原理」, 共立出版
 - [44] 松葉博則, 「超電導工学 ー現像と工学への応用ー」, 東京電機大学出版局
 - [45] 「超電導・低温工学ハンドブック 低温工学協会編」, オーム社
 - [46] 「プラズマ半導体プロセス工学：成膜とエッチング入門」, 内田老鶴圃
 - [47] ト部 吉庸, 「化学の新研究」, 三省堂